



Caractérisation des microstructures trempées et sélection des variants dans le Zircaloy-4

My-Thu Tran

► To cite this version:

My-Thu Tran. Caractérisation des microstructures trempées et sélection des variants dans le Zircaloy-4. Autre. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2015. Français. NNT : 2015EMSE0775 . tel-01227329

HAL Id: tel-01227329

<https://theses.hal.science/tel-01227329>

Submitted on 10 Nov 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Présentée par

My Thu TRAN

Pour obtenir le grade de
Docteur de l'École nationale supérieure des mines de Saint-Étienne

Spécialité : Sciences et Génie des matériaux

CARACTERISATION DES MICROSTRUCTURES TREMPÉES ET SELECTION DES VARIANTS DANS LE ZIRCALOY-4

Soutenue publiquement à Saint-Étienne, le 16 janvier 2015

Membres du jury

Présidente :	Nathalie BOZZOLO	Professeure de l'Institut mines télécom, ENSMP CEMEF, Sophia-Antopolis
Rapporteurs :	Laurent BRIOTTET	Docteur HDR, CEA / LITEN, Grenoble
	Jérôme CREPIN	Maître de recherches des écoles des mines, ENSMP Centre des Matériaux P.-M. FORT, Évry
Invités:	Pierre BARBERIS	Docteur HDR, AREVA NP/Centre de recherche, Ugine
	Astrid PERLADE	Docteure, ArcelorMittal Research, Maizières-lès-Metz
Directeur de thèse :	Frank MONTHEILLET	Directeur de recherche CNRS émérite, ENSMSE Laboratoire Georges FRIEDEL, Saint-Étienne
Co-encadrant	David PIOT	Chargé de recherche des écoles des mines, ENSMSE Laboratoire Georges FRIEDEL, Saint-Étienne

THÈSE

Présentée par

My Thu TRAN

Pour obtenir le grade de
Docteur de l'École nationale supérieure des mines de Saint-Étienne

Spécialité : Sciences et Génie des matériaux

CARACTERISATION DES MICROSTRUCTURES TREMPÉES ET SELECTION DES VARIANTS DANS LE ZIRCALOY-4

Soutenue publiquement à Saint-Étienne, le 16 janvier 2015

Membres du jury

Présidente :	Nathalie BOZZOLO	Professeure de l'Institut mines télécom, ENSMP CEMEF, Sophia-Antopolis
Rapporteurs :	Laurent BRIOTTET	Docteur HDR, CEA / LITEN, Grenoble
	Jérôme CREPIN	Maître de recherches des écoles des mines, ENSMP Centre des Matériaux P.-M. FORT, Évry
Invités:	Pierre BARBERIS	Docteur HDR, AREVA NP/Centre de recherche, Ugine
	Astrid PERLADE	Docteure, ArcelorMittal Research, Maizières-lès-Metz
Directeur de thèse :	Frank MONTHEILLET	Directeur de recherche CNRS émérite, ENSMSE Laboratoire Georges FRIEDEL, Saint-Étienne
Co-encadrant	David PIOT	Chargé de recherche des écoles des mines, ENSMSE Laboratoire Georges FRIEDEL, Saint-Étienne

Spécialités doctorales

SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX
MECANIQUE ET INGENIERIE
GENIE DES PROCÉDES
SCIENCES DE LA TERRE
SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT

Responsables :

K. Wolski Directeur de recherche
S. Drapier, professeur
F. Gruy, Maître de recherche
B. Guy, Directeur de recherche
D. Grailliot, Directeur de recherche

Spécialités doctorales

MATHEMATIQUES APPLIQUEES
INFORMATIQUE
IMAGE, VISION, SIGNAL
GENIE INDUSTRIEL
MICROELECTRONIQUE

Responsables

O. Roustant, Maître-assistant
O. Boissier, Professeur
JC. Pinoli, Professeur
A. Dolgui, Professeur
S. Dauzere Peres, Professeur

EMSE : Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat (titulaires d'un doctorat d'État ou d'une HDR)

ABSI	Nabil	CR		CMP
AVRIL	Stéphane	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
BALBO	Flavien	PR2		FAYOL
BASSEREAU	Jean-François	PR		SMS
BATTON-HUBERT	Mireille	PR2	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BERGER DOUCE	Sandrine	PR2		FAYOL
BERNACHE-ASSOLLANT	Didier	PR0	Génie des Procédés	CIS
BIGOT	Jean Pierre	MR(DR2)	Génie des Procédés	SPIN
BILAL	Essaid	DR	Sciences de la Terre	SPIN
BOISSIER	Olivier	PR1	Informatique	FAYOL
BORBELY	Andras	MR(DR2)	Sciences et génie des matériaux	SMS
BOUCHER	Xavier	PR2	Génie Industriel	FAYOL
BRODHAG	Christian	DR	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BRUCHON	Julien	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	SMS
BURLAT	Patrick	PR2	Génie Industriel	FAYOL
COURNIL	Michel	PR0	Génie des Procédés	DIR
DARRIEULAT	Michel	IGM	Sciences et génie des matériaux	SMS
DAUZERE-PERES	Stéphane	PR1	Génie Industriel	CMP
DEBAYLE	Johan	CR	Image Vision Signal	CIS
DELAFOSSSE	David	PR1	Sciences et génie des matériaux	SMS
DESRAYAUD	Christophe	PR2	Mécanique et ingénierie	SMS
DOLGUI	Alexandre	PR0	Génie Industriel	FAYOL
DRAPIER	Sylvain	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
FEILLET	Dominique	PR2	Génie Industriel	CMP
FEVOTTE	Gilles	PR1	Génie des Procédés	SPIN
FRACZKIEWICZ	Anna	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GARCIA	Daniel	MR(DR2)	Génie des Procédés	SPIN
GERINGER	Jean	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	CIS
GOEURIOT	Dominique	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GRAILLOT	Didier	DR	Sciences et génie de l'environnement	SPIN
GROSSEAU	Philippe	DR	Génie des Procédés	SPIN
GRUY	Frédéric	PR1	Génie des Procédés	SPIN
GUY	Bernard	DR	Sciences de la Terre	SPIN
HAN	Woo-Suck	CR	Mécanique et ingénierie	SMS
HERRI	Jean Michel	PR1	Génie des Procédés	SPIN
KERMOUCHE	Guillaume	PR2	Mécanique et Ingénierie	SMS
KLOCKER	Helmut	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
LAFOREST	Valérie	MR(DR2)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
LERICHE	Rodolphe	CR	Mécanique et ingénierie	FAYOL
LI	Jean-Michel		Microélectronique	CMP
MALLIARAS	Georges	PR1	Microélectronique	CMP
MOLIMARD	Jérôme	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
MONTHEILLET	Frank	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
MOUTTE	Jacques	CR	Génie des Procédés	SPIN
NEUBERT	Gilles			FAYOL
NIKOLOVSKI	Jean-Pierre			CMP
NORTIER	Patrice	PR1		SPIN
PIJOLAT	Christophe	PR0	Génie des Procédés	SPIN
PIJOLAT	Michèle	PR1	Génie des Procédés	SPIN
PINOLI	Jean Charles	PR0	Image Vision Signal	CIS
POURCHEZ	Jérémy	CR	Génie des Procédés	CIS
ROBISSON	Bruno			CMP
ROUSSY	Agnès	MA(MDC)		CMP
ROUSTANT	Olivier	MA(MDC)		FAYOL
ROUX	Christian	PR		CIS
STOLARZ	Jacques	CR	Sciences et génie des matériaux	SMS
TRIA	Assia	Ingénieur de recherche	Microélectronique	CMP
VALDIVIESO	François	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	SMS
VIRICELLE	Jean Paul	MR(DR2)	Génie des Procédés	SPIN
WOLSKI	Krzystof	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
XIE	Xiaolan	PR1	Génie industriel	CIS
YUGMA	Gallian	CR	Génie industriel	CMP

ENISE : Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat (titulaires d'un doctorat d'État ou d'une HDR)

BERGHEAU	Jean-Michel	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE
BERTRAND	Philippe	MCF	Génie des procédés	ENISE
DUBUJET	Philippe	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE
FEULVARCH	Eric	MCF	Mécanique et Ingénierie	ENISE
FORTUNIER	Roland	PR	Sciences et Génie des matériaux	ENISE
GUSSAROV	Andrey	Enseignant contractuel	Génie des procédés	ENISE
HAMDI	Hédi	MCF	Mécanique et Ingénierie	ENISE
LYONNET	Patrick	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE
RECH	Joël	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE
SMUROV	Igor	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE
TOSCANO	Rosario	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE
ZAHOUANI	Hassan	PU	Mécanique et Ingénierie	ENISE

Remerciements

J'adresse un grand merci à Nathalie Bozzolo pour avoir accepté de présider mon jury de thèse. Je remercie également Laurent Briottet et Jérôme Crépin qui m'ont fait l'honneur d'être les rapporteurs de ce travail de thèse. Merci à Astrid Perlade d'avoir accepté de faire partie du jury de thèse.

Je tiens à remercier toutes les personnes qui ont pu m'apporter leur aide tant technique que scientifique au cours de mes années de thèse :

- l'équipe de l'atelier : Bernard Allirand, Gilles Chauve, Marc Robert pour les découpes des échantillons
- l'équipe de chimie : Delphine Juhem, Annie Reynaud, Yoann Garnier et Max Boudes pour la préparation des solutions
- Séverine Girard-Insardi, Pauline Lambert et Claire Roume pour leur jovialité et leurs aides aux essais mécaniques qui semblent être un monde féminin...
- Gilles Blanc pour son expertise en métallographie
- Marilyne Mondon, Sergio Sao-Joao et Paul Jouffrey pour leur maîtrise du MEB et de l'EBSD.

Je remercie les enseignants de l'école des Mines de Saint-Etienne que j'ai pu côtoyer, en particulier Michel Darrieulat pour son explication de la « main invisible » (Inclusion d'Eshelby pour les connaisseurs), Anna Fracziewicz, Krysystof Wolski, Helmut Klöcker, Asdin Aoufi, Cédric Bosch, David Delafosse et Andras Borbély.

Je voudrais également remercier le directeur du département RMT, Christophe Desrayaud pour son dynamisme, son écoute, son sens de l'humour, son humilité, ses supers idées expérimentales mais surtout pour sa « ponctualité légendaire ».

Merci à Gilles Damamme, mon co-directeur de thèse, qui n'a malheureusement pas pu être présent lors de ma soutenance de thèse pour une question de santé. Je garde un bon souvenir de nos échanges et débats sur la minimisation ou la maximisation de l'énergie élastique du système.

Je suis très reconnaissante envers mon encadrant industriel Pierre BARBERIS pour m'avoir permis de travailler sur les alliages de zirconium et de m'avoir donné l'occasion de visiter avec lui, le NFC à Hyderabad, c'était très enrichissant.

Je remercie David Piot, mon co-encadrant de thèse pour ces longues discussions scientifiques, ses encouragements et son partage fraternel. Merci de m'avoir tant enseigné sur différents domaines, à la fois scientifiques et culturels.

Je suis très reconnaissante envers mon directeur de thèse, Frank Montheillet pour m'avoir permis de réaliser cette thèse. Cela a été un honneur de travailler avec lui et d'avoir été sa dernière doctorante. « Les rotations des tenseurs 6x6 en simultanéité avec toi, côte à côte, devant un petit tableau avec David, derrière qui comparait les deux résultats, reste un de mes meilleurs souvenirs de ton encadrement. »

« Mon seul regret est de n'avoir pas pu conduire ta voiture. »

Enfin, un grand merci au couloir K4 ! Merci aux doctorants, stagiaires et personnes de passages d'avoir mis l'ambiance... une ambiance de travail productive bien sûr ! Je tiens à remercier : Grégoire J., Béné J., Mélanie S., Natalia M., Etienne M., Tanguy M., Christophe C., Fiona R., Robin G., Ameth F., Jaroslav Č., Monika H., Karolina M., Laurent M., Fred P., Aly T., Amevi T., Amélie N., Pierre L., Carlos R., Yamen B., Razzak M., Krysystof D., John W., Cécilia P., Anthony G., Charles T., ...

et tout particulièrement à

Alix V. pour son écoute,

Loïc R. pour son jeune esprit,

Lisa G. pour son hospitalité dans l'antre des doctorants,

Adhish M. pour sa vivacité d'esprit, c'est tellement agréable d'être comprise rapidement et d'avoir une réponse immédiate...

à mes deux amis depuis le Master de Recherche :

Vincent : « ce que l'on conçoit bien s'énonce clairement et les mots pour le dire viennent aisément...

Gaspard, merci ! »

À Monsieur Wikipédia Word (Flavien Vucko) : « merci d'avoir sacrifié ton doigt pour la réussite de mes expériences avec le four à induction, merci de m'avoir fait bénéficier de ton sens d'analyse, de ta perspicacité et merci d'avoir toujours été là quand il fallait. »

Enfin, un grand merci à Jean-Baptiste pour une liste de choses, beaucoup trop longue à écrire et sans doute infinie.

Table de matières

INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE I : ÉTAT DE L'ART	7
<i>I.1. Les alliages de zirconium</i>	<i>7</i>
I.1.1. Les nuances d'alliage de zirconium	7
I.1.2. Les propriétés du zirconium	8
I.1.3. Le rôle des différents éléments d'alliage	11
<i>I.2. La transformation de phase.....</i>	<i>12</i>
I.2.1. Classification des transformations de phase	12
a. Classification basée sur la thermodynamique	12
b. Classification basée sur le mécanisme	13
c. Classification basée sur la cinétique	14
d. Unification des classifications.....	15
I.2.2. Comparaison entre les transformations martensitique et diffusive	16
a. Thermodynamique	16
i. Transformation martensitique	16
ii. Transformation diffusive	18
b. Distorsion de Bain.....	19
c. Microstructure de trempe	21
<i>I.3. Transformation de phases dans les alliages de zirconium.....</i>	<i>24</i>
<i>I.4. Sélection des variants.....</i>	<i>33</i>
<i>I.5. Conclusion</i>	<i>45</i>
CHAPITRE II : MODELE DE SELECTION DE VARIANTS.....	51
II.1. Bibliographie	51
II.1.1. Transformation bainitique.....	51
II.1.2. Transformation de Widmanstätten cubique centré vers hexagonal.....	52
II.1.3. Conclusions pour notre travail	53
II.2. Principe de la sélection de variants	54
II.2.1. Hypothèse de la minimisation de l'énergie élastique du système	55
II.2.2. Simplifications possibles des calculs.....	57
II.2.3. Calculs analytiques de sélection des variants.....	58
a. Contrainte externe imposée nulle	58
b. Contrainte externe imposée non-nulle	59
c. Facteur de Kearns	62

d. Transformation dans un polycristal	62
II.3. Automate cellulaire	64
II.3.1. Description de l'automate pré-existant	64
II.3.2. Implémentation de nouveaux paramètres.....	65
a. Accommodation d'Eshelby	66
b. Anisotropie du cristal hexagonal	68
c. Présence d'une contrainte plane	70
d. Assemblage de quatre grains β	71
II.4. Résultats des modèles de sélection de variants.....	72
II.4.1. Résultats analytiques.....	72
II.4.2. Résultats obtenus à l'aide de l'automate cellulaire	74
a. Influence de l'accommodation d'Eshelby.....	74
b. Influence de l'anisotropie de la maille hexagonale	77
c. Assemblage de 4 ex-grains β	80
II.4.3. Discussion des résultats	85
II.5. Conclusions sur la modélisation	86
 CHAPITRE III : TECHNIQUES ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX.....	 89
III.1. Traitements thermiques.....	89
III.1.1. Cinétique de croissance des grains β	90
a. Traitements thermiques avec un maintien en β	91
b. Double trempe.....	91
c. Chauffage rapide dans le four à induction.....	93
III.1.2. Quantification des caractères vannerie/platelets parallèles.....	94
III.1.3. Sélection des variants.....	94
a. Influence de la vitesse de trempe.....	95
b. Effet d'une contrainte appliquée lors du refroidissement	95
III.2. Analyse d'image	95
III.2.1. Préparation métallographique des échantillons	97
III.2.2. Quantification de la taille des ex-grains β	98
III.2.3. Quantification des colonies α	99
a. Imagerie optique des structures de Zy-4 trempé	100
b. Indice χ	100
c. Traitement d'image.....	102
d. Validation du traitement d'image	105
i. Comparaison avec l'analyse EBSD	105
ii. Effet de l'angle de polarisation.....	106
iii. Effet du grandissement	107
III.3. Analyse EBSD.....	107
III.3.1. Préparation des échantillons.....	108

III.3.2. Principe de l'analyse EBSD.....	108
III.3.3. Méthodologie de quantification des variants α	111
III.3.4. Suivi d'un ex-grain β au cours des traitements thermiques.....	115
III.4. Conclusion.....	117

CHAPITRE IV : INFLUENCE DES TRAITEMENTS THERMIQUES SUR LA MICROSTRUCTURE DE TREMPÉ DU ZIRCALOY-4 119

IV.1. Caractérisation des états initiaux	119
IV.1.1. Taille des grains	120
IV.1.2. Orientation des grains.....	121
IV.2. Influence des traitements thermiques	125
IV.2.1. Cinétique de la croissance des grains β	125
a. État brut de forge	125
b. État « trempé industriel ».....	127
c. Comparaison des lois de croissance en fonction du temps de maintien	129
d. Effet d'une double trempe	130
IV.2.2. Paramètres influençant les caractères morphologiques	133
a. Effet de la vitesse de trempe	135
b. Effet d'une trempe sur le caractère morphologique dans chaque grain β	137
c. Effet d'une contrainte imposée pendant la trempe sur le caractère morphologique.....	138
IV.2.3. Effet des traitements thermiques et thermomécaniques sur la sélection des variants	139
a. Effet de la trempe en surface	139
b. Effet de la trempe et de la vitesse de refroidissement en volume.....	141
c. Effet d'une contrainte au cours du refroidissement.....	145
IV.3. Comparaison des résultats expérimentaux et théoriques relatifs à la sélection de variants.....	145
IV.3.1. Influence d'une contrainte plane durant la trempe.....	146
IV.3.2. Effet d'une trempe sur un assemblage de quatre ex-grains β	148
a. Effet d'une trempe sur la surface de l'assemblage de quatre ex-grains β	148
b. Effet d'une trempe sur une section proche de la surface de l'assemblage de quatre ex-grains β	151
c. Effet d'une trempe sur le volume de l'assemblage de quatre ex-grains β	153
IV.3.3. Effet d'une contrainte appliquée lors de la transformation sur un ensemble de quatre ex-grains β ..	154
a. Effet d'une contrainte de traction appliquée lors de la trempe.....	155
b. Effet d'une contrainte en compression appliquée lors de la trempe	157
IV.4. Conclusion.....	157

DISCUSSION GENERALE, CONCLUSION, ET PERSPECTIVES 161

Introduction

Dans l'industrie du nucléaire, les assemblages de combustible, situés au cœur des réacteurs (Figure 1a) aussi bien à eau pressurisée qu'à eau bouillante, sont constitués en quasi-totalité d'alliages de zirconium. Un assemblage est constitué de 264 crayons contenant la matière fissile et d'un cadre métallique appelé « squelette ». Un de ces crayons contient environ 300 pastilles d'oxyde d'uranium. Et le squelette est composé de tubes-guide, de grilles de maintien et d'embouts d'extrémité (Figure 1b). Selon les types de centrale, le cœur comprend :

- entre 121 et 250 assemblages combustibles pour les réacteurs à eau pressurisée ;
- entre 160 et 800 pour les réacteurs à eau bouillante.

Ces assemblages restent en moyenne entre trois et quatre ans dans un réacteur. Ils constituent la première barrière de confinement, c'est pour cela qu'ils doivent posséder des propriétés particulières : une bonne résistance à la corrosion, des propriétés mécaniques satisfaisantes et surtout une faible section efficace de capture neutronique [1]. À titre de comparaison, la section de capture neutronique d'un acier austénitique est en effet 30 fois plus élevée que celle du Zr, quant à celle du hafnium, elle est environ 600 fois plus élevée que celle du Zr toujours (Tableau 1).

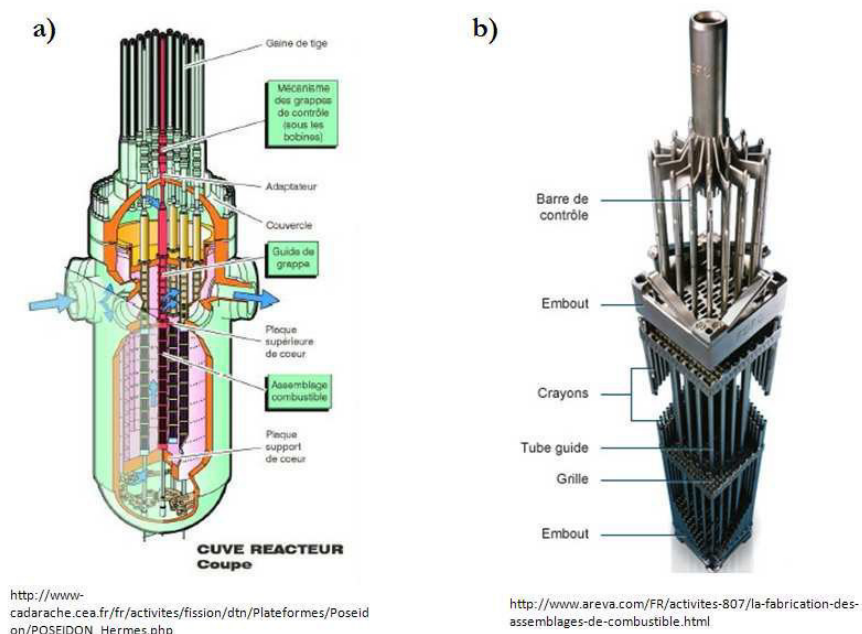


Figure 1 : a) cœur d'un réacteur nucléaire ; b) assemblage combustible

Tableau 1 : Section efficace de capture pour les neutrons thermiques de 0,025eV [2]

Elément	Section efficace par noyau (en 10^{-24} cm ²)	Elément	Section efficace par noyau (en 10^{-24} cm ²)
H	0,332	Zr	0,185
C	0,0035	Sn	0,63
N	1,85	Fe	2,55
O	0,00027	Cr	3,1
B	759	Nb	1,15
Cl	33,6	Ni	4,43
Ti	6,1	Hf	102
Co	37,2	Ta	10,4

Le zirconium

Le zirconium existe à raison de 0,028 % massique dans la croûte terrestre sous forme de minerai, le zircon (ZrSiO_4). L'obtention du zirconium métal s'effectue par le procédé de Kroll. Cette métallurgie extractive est assez lourde compte tenu du fait d'une très grande affinité du Zr vis-à-vis de l'oxygène, mais aussi du fait de la nécessité d'avoir très peu d'éléments capturant les neutrons tels que le Hf, présent à une teneur de 2 à 4 % dans le minerai d'origine, ainsi que le B, Co, Ta, Ti [2]. Le Zr se présente sous deux formes cristallographiques, à basse température il est hexagonal compact et à haute température, il possède une structure cubique centrée. La température de transition du Zr pur est de 865 °C.

Fabrication des tubes gaines de combustibles

Le cycle de fabrication des tubes de gainage est un long procédé. En France, les éponges de Zr sont produites à Cézus Jarrie. À Cézus Ugine, le métal est fondu dans un four à arc sous vide (VAR) avec ses éléments d'alliage. Le lingot ainsi obtenu subit plusieurs étapes de forgeage, ce qui donne d'une part des largets, d'autre part des barres. Les largets sont envoyés à Cézus Rugles pour l'élaboration des produits plats. Les barres sont tronçonnées, forées puis filées pour former des ébauches filées qui sont transportées à Cézus Montreuil-Juigné. Cette usine réalise les opérations de laminage à pas de pèlerin des tubes pour former des tubes ébauches (TREX) destinés à la fabrication des tubes gaines et guides. Les TREX sont envoyés à Cézus Paimboeuf pour les opérations de finition et de contrôles (Figure 2a).

Tout le long de ce procédé de fabrication, les alliages de Zr subissent de multiples étapes de mise en forme entrecoupées de trempes et de recuits. Ces opérations, appelées traitements thermomécaniques, ont pour but d'optimiser les propriétés d'emploi en ajustant la microstructure ainsi que la texture cristallographique du matériau.

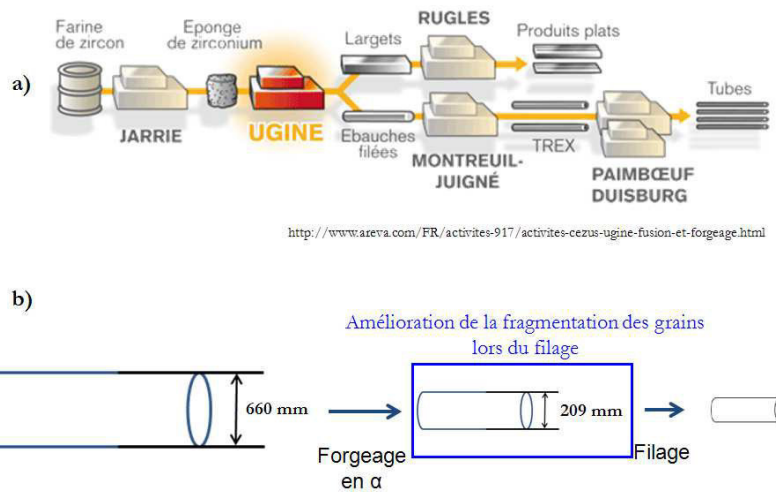


Figure 2 : a) Chaîne de production des produits en alliage de zirconium à UGINE ; b) problématique de la thèse

Problématique de la thèse

Cette thèse s'intéresse plus particulièrement à la caractérisation des microstructures de trempe des barres en Zircaloy-4 (Zy-4) issues de la forge afin d'améliorer la fragmentation des grains lors du filage (Figure 2b). Le terme de trempe est utilisé ici pour définir le fait que la billette est chauffée jusqu'à la température du domaine β puis est refroidie à l'eau mais ceci n'implique en aucun cas une forte vitesse de refroidissement. Des trempes sont effectuées plusieurs fois tout au long du procédé de fabrication, depuis la fusion jusqu'à la trempe finale sur certains produits finis, sans oublier les trempes après forgeage et soudage. Lors d'accidents de perte de réfrigérant primaire des réacteurs, le matériau peut également subir une trempe lors du re-noyage. Une trempe permet, au cours du procédé de transformation [3] :

- une homogénéisation de la microstructure en dissolvant les particules de seconde phase et une homogénéisation des éléments d'addition en solution solide ;
- une modification de la texture qui devient pseudo-isotrope, c'est-à-dire que les facteurs de Kearns sont proches de 1/3, ce qui assure l'isotropie de certaines propriétés telles que l'élasticité et la nullité de la croissance sous irradiation. Néanmoins, du fait de la texture seulement pseudo-isotrope, certaines orientations préférentielles sont présentes dans le matériau engendrant une anisotropie de la plasticité [4].

L'objectif de la trempe est aussi d'assurer une bonne tenue à la corrosion et d'obtenir une structure standard reproductible.

Les microstructures issues de la trempe sont lamellaires, c'est une structure dite de Widmanstätten. À haute température, les grains β sont équiaxes et leur taille varie de quelques

Introduction

centaines de micromètres à plus d'un millimètre. Lors de la transformation de phase, les lamelles germent soit au sein de ces grains β , soit à partir des joints de grains β . Selon le mode de germination, ces lamelles présentent deux morphologies distinctes respectivement : soit elles sont enchevêtrées, c'est alors une structure en vannerie, soit elles sont parallèles entre elles, c'est une structure en platelets parallèles. Ces différentes morphologies ont une forte influence sur la fragmentation des lamelles lors du filage. En effet, la microstructure souhaitée après filage est équiaxe afin de faciliter notamment les opérations de la mise en forme ultérieures. Le caractère vannerie est plus favorable à la fragmentation et donc ensuite à la recristallisation (Figure 3a et a') que les platelets parallèles qui, au contraire, forment une structure « duplex » (Figure 3b et b'). Cette dernière structure peut engendrer des difficultés pour contrôler les tubes par ultrasons, en effet les gros grains mal recristallisés peuvent être responsables d'échos ultrasonores perturbant les contrôles.

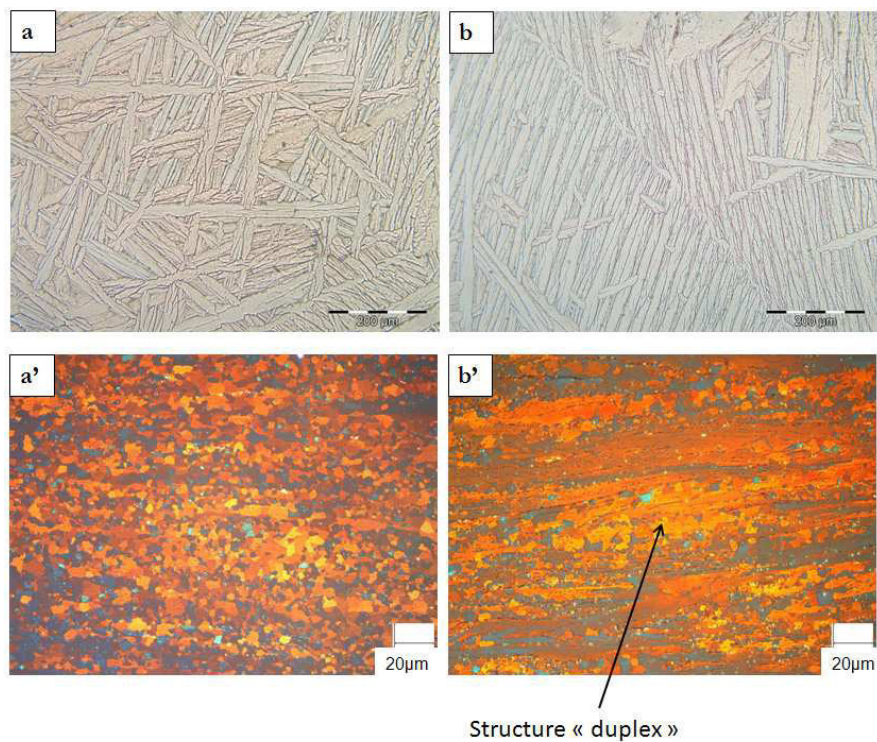


Figure 3 : a et b) microstructures issues de la trempe ; a' et b') microstructures filées (données de Cézus)

Outre l'aspect morphologique, les lamelles α croissent en suivant certaines relations cristallographiques avec le grain β dont elles sont issues. Ces relations d'orientation sont appelées les relations de Burgers. Un grain β peut engendrer douze orientations de lamelles α différentes appelées variants. La probabilité d'apparition de chaque variant dépend des traitements thermomécaniques que l'on impose au matériau. En effet, les propriétés des alliages possédant une structure cristalline hexagonale, comme le zirconium ou le titane, dépendent fortement de

leur texture cristallographique. Ceci est dû à l'anisotropie des propriétés au niveau cristallographique qui influence, par exemple, la limite d'élasticité, la dilation thermique et la plasticité. Il est donc nécessaire de comprendre le développement de la texture au cours des différents cycles thermomécaniques que subit le matériau pour pouvoir maîtriser ses propriétés. Plusieurs auteurs ont étudié la sélection des variants à travers des analyses de textures. Plusieurs contradictions et résultats inexpliqués montrent que le mécanisme n'est pas encore compris.

Cette thèse comporte à la fois des aspects très pragmatiques telles que la quantification des caractères morphologiques dont l'industriel a besoin pour avoir un meilleur suivi des évolutions microstructurales, et des aspects plus théoriques comme la détermination des paramètres pouvant influencer la sélection des variants. La compréhension de cette sélection des variants se situe certes très en amont de l'application industrielle actuelle mais elle reste très intéressante et peut servir à maîtriser la microstructure de trempe.

Ce manuscrit comprend ainsi quatre chapitres :

- Le *premier chapitre* est un état de l'art sur l'alliage Zircaloy-4. D'une part, il définit de manière détaillée les aspects morphologiques et cristallographiques des microstructures issues de la transformation de phase. D'autre part, il expose l'intérêt de plus en plus d'auteurs portant à la sélection des variants.
- Le *deuxième chapitre* présente une approche analytique de la sélection des variants basée sur la minimisation de l'énergie élastique de la transformation de phase. Plusieurs modèles sont décrits dans cette partie. Le chapitre présente aussi un outil numérique, l'automate cellulaire, appliquant ces modèles ainsi que les résultats issus de cette modélisation.
- Le *troisième chapitre* expose les différentes techniques qui permettent de caractériser les microstructures de trempe. Un indice, obtenu par traitement d'image, est introduit pour quantifier le caractère vannerie/platelets parallèles. Et à l'aide des analyses EBSD, une méthodologie est mise en œuvre pour quantifier les fractions de chaque variant et permettre le suivi de l'évolution microstructurale. Les dispositifs expérimentaux qui permettent d'influer sur cette évolution sont aussi décrits.
- Enfin dans le *dernier chapitre*, les résultats expérimentaux sont utilisés pour identifier les différents paramètres qui ont une influence sur les évolutions microstructurales du Zircaloy-4. La discussion s'articule autour des hypothèses posées et des informations extraites des expériences pour conclure sur cette caractérisation des microstructures de trempe dans les alliages de zirconium.

Références :

- [1] P. Barberis, Propriétés du zirconium et du hafnium, Techniques de l'ingénieur, M4785, 2009, 10 pages.
- [2] R. Tricot, Zirconium et hafnium, Techniques de l'ingénieur, M2360, 1994, 19 pages.
- [3] D. Charquet, Traitements thermiques du zirconium et du hafnium, Techniques de l'ingénieur, M1345, 1985, 7 pages.
- [4] C. Chauvy, P. Barberis, F. Montheillet, Microstructure transformation during warm working of β -treated lamellar Zircaloy-4 within the upper α -range, Materials Science and Engineering: A. 431, 2006, pp 59–67.

CHAPITRE 1

Chapitre I : État de l'art

Dans ce chapitre sont présentés les résultats bibliographiques sur lesquels s'appuient les travaux de la présente thèse. Mais tout d'abord, nous allons présenter quelques généralités concernant les différents alliages de zirconium notamment ceux fabriqués par la société Cézus-Areva. Dans la première section, sont présentées les nuances et les propriétés de ces différents alliages. Dans la deuxième section, nous présentons la transformation de phase dans sa globalité pour se concentrer, dans la section suivante, sur la transformation de Widmanstätten dans les alliages de zirconium. Enfin nous exposons les divers résultats trouvés dans la littérature concernant la sélection des variants.

I.1. Les alliages de zirconium

Un des premiers alliages de zirconium retenu comme matériau de gainage du combustible nucléaire fut le Zircaloy-1 qui contenait une addition de 2,5 %massique d'étain. Mais, sa fabrication à peine commencée en 1952, on constatait que la tenue à la corrosion du Zircaloy-1 se dégradait fortement au cours du temps. Ce fut alors qu'en août 1952, une pollution accidentelle d'un lingot de Zircaloy-1 par un morceau d'acier inoxydable austénitique a mené à la découverte du Zircaloy-2 et de sa variante sans nickel le Zircaloy-4. Ainsi, l'utilisation des alliages de zirconium comme gainage combustible a pu débiter pour des applications nucléaires militaires dès 1955. Les premiers réacteurs civils de puissance électrique comprise entre 100 et 250 MW entrèrent en fonctionnement avec des gaines en acier inoxydable. Ce fut seulement à partir de 1970 que le Zircaloy remplaça, dans les gainages, l'acier inoxydable au bilan neutronique très défavorable. Le Zircaloy-4 est actuellement l'alliage nucléaire de référence car il constitue un bon compromis entre la transparence aux neutrons, la tenue au fluage et à la corrosion en milieu aqueux à 300 °C, la stabilité de comportement sous irradiation et la ductilité à froid.

I.1.1. Les nuances d'alliage de zirconium

Le centre de recherche de Cézus, filiale d'Areva-NP, s'intéresse à toutes les étapes de la métallurgie du zirconium, de la conversion du zircon jusqu'à l'élaboration des demi-produits en alliages de zirconium. L'usine d'Ugine élabore et transforme les alliages de zirconium, Zircaloy-2 (Zy-2), Zircaloy-4 (Zy-4) et M5, à partir d'éponges de zirconium provenant de l'établissement de Cézus à Jarrie et de chutes recyclées (copeaux, éléments d'additions). La composition de ces alliages est présentée dans le Tableau I-1.

Tableau I-1 : Composition massique nominale visée des alliages de zirconium [données CEZUS AREVA]

	Sn (%)	Fe (%)	Cr (%)	Ni (%)	O (ppm)	Nb (%)
Zircaloy-2	1,45	0,13	0,10	0,05	1 100	
Zircaloy-4	1,45	0,21	0,10	< 0,005	1 100	
M5		350 ppm			1 400	1

Le Zircaloy-4 est un dérivé du Zircaloy-2 ; l'addition de nickel a été supprimée dans le but d'améliorer notamment la résistance à la corrosion, et de réduire la sensibilité à la fragilisation par l'hydrogène [1]. L'alliage M5 se distingue des autres alliages de zirconium par sa composition chimique dont l'élément principal d'alliage est le niobium et une teneur accrue en oxygène. Cette composition confère au M5 une meilleure résistance à la corrosion et un fluage moindre sous irradiation [2].

I.1.2. Les propriétés du zirconium

Le zirconium Zr est un élément stable du groupe IVB-4^e colonne dans le tableau de Mendeleïev. Il est rarement mentionné sans ses voisins du dessus et du dessous, le titane Ti et le hafnium Hf. Ce qui rend, d'ailleurs, difficile la séparation par voie chimique du zirconium et du hafnium, ce dernier est présent naturellement dans l'oxyde ZrO_2 ; cette séparation est essentielle car le hafnium a une très grande section efficace de capture des neutrons et la teneur en Hf doit être minimisée drastiquement pour les applications nucléaires. Leur structure électronique similaire explique leurs propriétés chimiques voisines, marquées par un caractère fortement électropositif. La structure électronique externe est $4d^25s^2$, la sous-couche externe, qui ne peut contenir que $2 e^-$, est remplie ($5s^2$), la sous-couche 4d, elle, est partiellement remplie (par $2 e^-$ sur les $10 e^-$ possibles pour les liaisons (d'où la coordinance dans l'oxyde stable ZrO_2). Cependant leurs applications principales se sont révélées fondamentalement différentes. Quelques propriétés physiques de ces trois éléments sont répertoriées dans le Tableau I-2.

Comme près de la moitié des éléments de la classification périodique, le zirconium présente deux structures cristallographiques dont les domaines de stabilité sont déterminés par la température et la pression. À pression et température ambiantes, la phase stable est hexagonale compacte (phase α), et celle qui est stable au-dessus de la température de transformation allotropique à pression atmosphérique est la phase cubique centrée (phase β). Dans le cas du zirconium pur, cette température est de 865 °C.

La maille hexagonale pseudo-compacte (Figure I-1) a pour paramètres $a=0,32$ nm et $c=0,52$ nm soit un rapport c/a de 1,59. La maille primitive est un prisme droit à base losange (angles de 120° et 60°), on considère généralement une maille conventionnelle triple de la maille élémentaire [8]. Les différents plans et directions cristallographiques sont définis par les indices de Miller-Bravais dans un repère à 4 axes reflétant au mieux la symétrie hexagonale.

La structure peut être décrite comme un empilement de plans compacts parallèles au plan de base (0001) dont la séquence est ABABABA...

Tableau I-2 : Quelques propriétés physiques des éléments Ti, Zr et Hf [3][4][5][6][7]

Propriétés physiques	Titane	Zirconium	Hafnium
Numéro atomique	22	40	72
Nombre d'isotopes naturels	5	5	6
Maille cristalline à 20 °C	hc (α)	hc (α)	hc (α)
Température $T_{\alpha/\beta}$ de transformation allotropique (°C)	882	865	1760
Maille au-dessus de $T_{\alpha/\beta}$	cc (β)	cc (β)	cc (β)
Masse volumique à 20 °C ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	4,5	6,5	13,2
Température de fusion (°C)	1 670	1 850	2 225
Coefficient de dilatation à 25 °C ($10^{-6}\text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$)	8,5	5,8	5,9
Capacité thermique massique à 25°C ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot^{\circ}\text{C}^{-1}$)	522	276	146
Conductivité thermique à 25 °C ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot^{\circ}\text{C}^{-1}$)	16,7	21,1	23
Diffusivité thermique à 25 °C ($10^2\text{cm}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	7,1	11,8	11,9
Résistivité à 25 °C ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	48	44	35
Conductivité électrique par rapport au Cu (% IACS)	3,5	3,8	4,8
Enthalpie de formation de l'oxyde ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	-1 036	-1 093	-1 129
Module d'Young à 20 °C (MPa)	108 000	98 000	140 000
Module de cisaillement à 20 °C (GPa)	40,6	36,5	54,2
Coefficient de Poisson	0,33	0,35	0,29
Section de capture des neutrons (barn)	6,1	0,18	115

La Figure I-2 illustre les principaux plans ainsi que les directions possibles de glissement. Le développement de la texture dépend de ces mécanismes de glissement. Les matériaux à structure hexagonale comme le zirconium ayant un rapport c/a inférieur à 1,63 (valeur caractérisant l'empilement compact idéal) ont, pour principal mode de déformation plastique, le glissement prismatique sur les plans $\{1\bar{1}00\}$ selon les directions $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ [9][10].

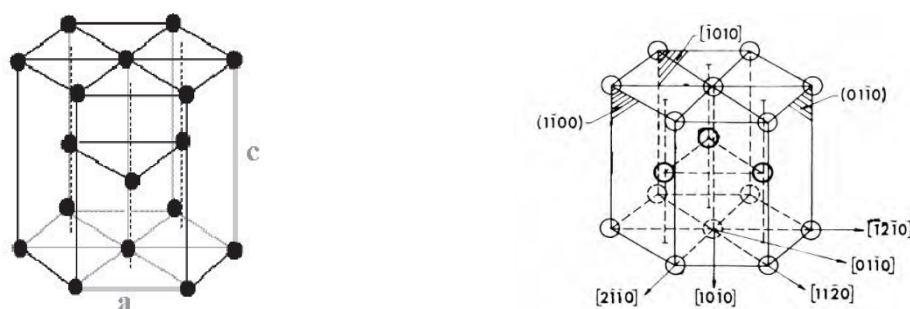


Figure I-1 : Conventions de notations cristallographiques de la structure hexagonale

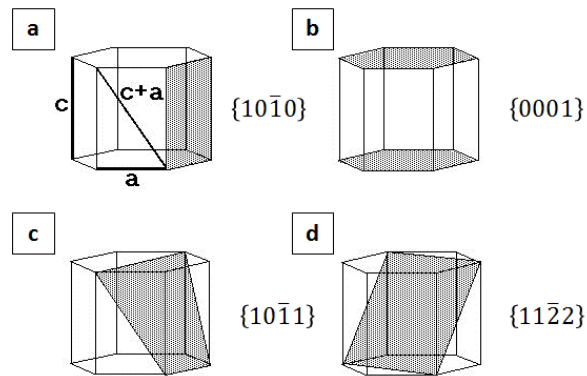


Figure I-2 : Les différents plans de glissement potentiels dans les matériaux hexagonaux : a) prismatique, b) basal, c) pyramidal de 1^{re} espèce et d) pyramidal de 2^e espèce

Cette structure hexagonale entraîne naturellement une anisotropie de certaines propriétés du matériau (Tableau I-3).

La maille cubique centrée est plus isotrope (Tableau I-3). Cette structure n'est pas compacte, le paramètre de maille est $a=0,36$ nm, les huit directions $\langle 111 \rangle$ sont les plus denses. Elle possède six plans $\{110\}$ qui font un empilement ABABABAB.

Tableau I-3 : Principales propriétés physiques de la phase α et de la phase β du zirconium pur
[11][12][13][14]

Propriétés	Phase α	Phase β
Paramètres de maille (nm)	$a=0,323$ $c=0,515$	$a=0,362$
Masse volumique (g.cm^{-3})	6,5	6,48
Chaleur massique ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	276	325
Conductivité thermique ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$)	21,1	29
Résistivité thermique ($\mu\Omega.\text{m}$)	0,44	1,11
Coefficients linéiques de dilatation thermique (K^{-1})	$\alpha_a \approx 5.10^{-6}$ $\alpha_c \approx 9,5.10^{-6}$	$\approx 5,5.10^{-6}$
Modules d'élasticité du monocristal (GPa)	$C_{11}=C_{22}=99$ $C_{33}=125$	$C_{11}=C_{22}=C_{33}$ $=45$

La transformation $\beta \rightarrow \alpha$ entraîne une dilatation du volume spécifique,

$$\frac{V_{\alpha}^m}{V_{\beta}^m} = \frac{\sqrt{3}a_{\alpha}^2c_{\alpha}}{2a_{\beta}^3} \approx 0,981$$

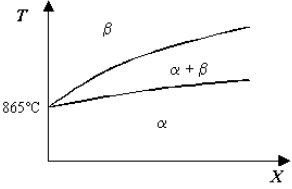
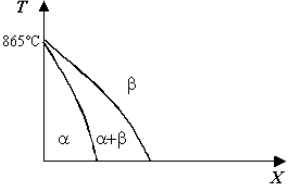
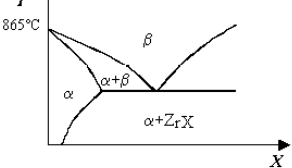
Si la déformation de Bain était petite, on aurait

$$\frac{V_{\alpha}^m - V_{\beta}^m}{V_{\beta}^m} = \text{tr } \varepsilon^B \approx 0,0206$$

I.1.3. Le rôle des différents éléments d'alliage

Les éléments d'alliage présents dans le Zy-4 font apparaître un domaine biphasé hcp-bcc compris entre 810 °C et 980 °C. On peut distinguer les éléments alphagènes qui stabilisent la phase α et augmentent la température de transformation allotropique et les éléments bêtagènes qui, au contraire, abaissent la température de transition (Tableau I-4). Les éléments bêtagènes eutectoïdes tels que Fe, Cr, Ni, Cu, Si, Nb et V forment avec Zr une réaction eutectoïde de décomposition de la phase β . Ils sont très solubles en phase β et sont souvent quasi insolubles en phase α . Ils précipitent dans celle-ci sous forme de composés intermétalliques [15].

Tableau I-4 : Influence des éléments d'addition sur les domaines de phases du Zircaloy-4 [9]

		Influence sur le diagramme de phase	Elements
Alphagènes			O, Sn, Al, N, Hf
Bêtagènes	Isomorphes		Ti
	Eutectoïdes		Fe, Cr, Ni, Nb, Cu, V

Le rôle des principaux éléments d'alliage du Zy-4 peut être résumé comme suit :

- l'élément Sn est alphagène, il est plus soluble dans la phase α que dans la phase β . Dans les années 1950, l'étain a été introduit pour contrer les effets de l'absorption d'azote par le matériau, responsable d'une mauvaise tenue à la corrosion. De nos jours, il est ajouté pour augmenter les propriétés mécaniques (la résistance au fluage par exemple). Il augmente aussi modérément la limite d'élasticité ;
- l'élément O est alphagène et très soluble en phase α . L'oxygène améliore sensiblement les caractéristiques mécaniques à froid. En solution solide interstitielle, il produit un effet de durcissement qui s'atténue avec la température ;
- les éléments Fe et Cr, bêtagènes eutectoïdes, sont très solubles en phase β , mais quasiment insolubles en phase α . Ainsi, des précipités intermétalliques de composition $Zr(Fe_{1-x}Cr_x)_2$ apparaissent lors du refroidissement depuis la phase β .

L'ajout de fer et de chrome améliore la tenue à la corrosion. La taille et la répartition spatiale des précipités influent largement sur cette caractéristique ;

- les impuretés telles que C, S et Si se trouvent en solution solide interstitielle dans le zirconium au-dessous de leur limite de solubilité. Leur effet sur les propriétés mécaniques est donc limité. Par exemple, il est admis que le carbone durcit la solution solide dès de très faibles concentrations, cependant la saturation intervient rapidement et l'effet durcissant n'évolue plus.

I.2. La transformation de phase

La transformation de phases dans le zirconium et le titane est analysée en détail par Banerjee [16]. Nous en présentons dans la suite de ce chapitre une synthèse adaptée au contexte de l'étude ; en l'absence de référence citée, les figures sont extraites du livre de Banerjee.

I.2.1. Classification des transformations de phase

Il existe trois critères de classification des transformations de phases dans les matériaux. Cette classification est basée soit sur un critère thermodynamique, soit sur les mécanismes, soit sur un critère d'ordre cinétique.

a. Classification basée sur la thermodynamique

Ehrenfest [17] a proposé une classification basée sur les dérivations successives d'une variable thermodynamique telle que l'enthalpie libre de Gibbs avec, comme variables externes, la température et la pression. L'ordre de la transformation de phases est donné par le plus petit degré de dérivation donnant lieu à une discontinuité au point de transition (un saut dans cette dérivée). Cette classification ne concerne que des systèmes constitués d'un seul élément et en équilibre.

Une transition de premier ordre est caractérisée par une discontinuité de l'entropie, de l'enthalpie et du volume spécifique à la température de transformation notée T_M sur la Figure I-3. Ainsi, le saut d'enthalpie à la discontinuité en T_M correspond à la chaleur latente de la transformation.

G est continue $\Leftrightarrow \Delta G = 0$; $G = H - TS$ donc $\Delta G = \Delta H - T_M \Delta S = 0$. Chaleur latente (notée q dans la Figure I-3) est égale à $\Delta H = T_M \Delta S$

Or par définition, $\left(\frac{\partial G}{\partial T}\right)_P = -S$ donc

$$\Delta G = 0 ; \quad \Delta \left(\frac{\partial G}{\partial T}\right)_P = -\Delta S = -\frac{\Delta H}{T_M} \quad (\text{I-1})$$

Le transfert d'énergie entre le système et son environnement n'est pas instantané, le système est dit hétérogène. La transformation ne se fait pas au même moment dans tout le système. Ces systèmes sont difficiles à étudier car leurs dynamiques sont violentes et peu contrôlables. Au contraire, les transitions de deuxième ordre, expression **(I-2)**, sont caractérisées par l'absence de chaleur latente de transformation de phases et l'existence d'une discontinuité de la capacité thermique (Figure I-3). Il n'y a pas de discontinuité des fonctions H, S et V. Elles sont qualifiées de transitions de phases continues.

$$\Delta \left(\frac{\partial G}{\partial T} \right)_P = -\Delta S = - \left(\frac{\Delta H}{T_C} \right) = 0$$

$$\Delta \left(\frac{\partial^2 G}{\partial T^2} \right)_P = -\frac{1}{T_C} \Delta \left(\frac{\partial H}{\partial T} \right)_P = -\frac{1}{T_C} \Delta C_P \neq 0 \quad (\text{I-2})$$

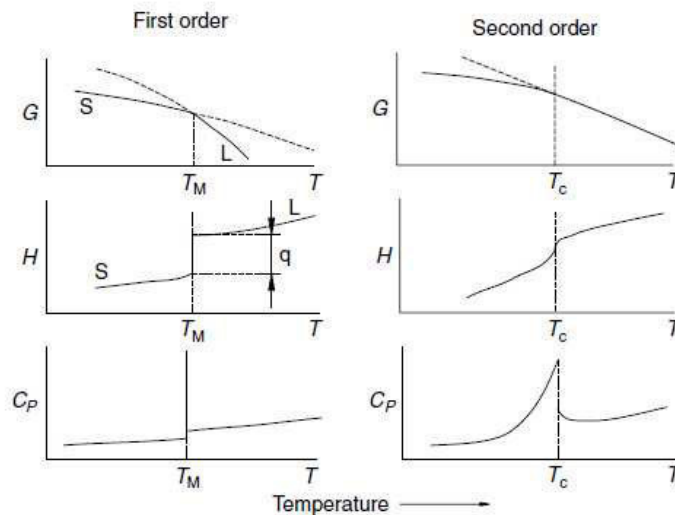
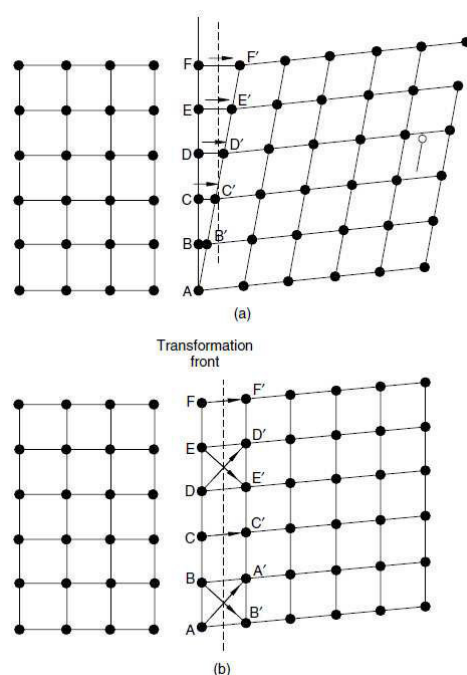


Figure I-3 : Évolution en fonction de la température des quantités thermodynamiques, énergie libre (G), enthalpie (H) et capacité thermique (C_p) des transformations de phases de 1^{er} et 2^e ordre, la chaleur latente est notée q.

b. Classification basée sur le mécanisme

Buerger [18] a introduit cette classification, dans laquelle les transformations de phases sont distinguées selon la nature du mouvement des atomes lors de la transformation. Elles sont soit displacives soit diffusives. Comme par exemple dans les aciers, la structure issue du refroidissement est fortement influencée par la vitesse de celui-ci. Une grande vitesse de refroidissement entraîne une transformation de type displacif, c'est-à-dire que le changement de phases se fait par une distorsion homogène du réseau entraînant un déplacement des plans cristallins, ou par un réarrangement des atomes, ou encore par une combinaison de ces mécanismes (Figure I-4a).



**Figure I-4 : Schémas des mouvements d'atomes lors des transformations de phase de type
a) displacif, b) diffusif**

Les transformations displacives peuvent être subdivisées en deux sous-groupes selon la prédominance des mécanismes de déformation du réseau (transformation martensitique) ou de réarrangement des atomes (ex : $\beta \rightarrow \omega$). Ce dernier ne sera pas détaillé dans cette thèse. Dans le zirconium, la transformation, qualifiée de transformation martensitique, commence par la formation des germes de grains α' et la croissance de ces derniers se fait par un cisaillement dont la vitesse s'approcherait de celle du son.

À l'opposé de cela, la transformation dite diffusive correspond à une transformation reconstructive. Les atomes de la phase parente diffusent de façon aléatoire pour former la nouvelle maille. Cela nécessite donc une rupture de la liaison atomique entre atomes voisins. Cette transformation est obtenue lorsque la vitesse de refroidissement diminue et elle engendre une structure de type ferritique ou bainitique dans les aciers.

c. Classification basée sur la cinétique

Le critère le plus important dans la classification cinétique est la dépendance à la température (activation thermique). Les transformations de phases de premier ordre débutent par la germination des grains de la nouvelle phase et leur croissance se produit par les mouvements d'interface entre la phase parente et la phase nouvelle. Ces mouvements peuvent être thermiquement activés ou athermiques. Initialement introduite par Le Chatelier, cette classification sépare les transformations de phases en deux groupes, suivant qu'elles sont considérées comme rapides ou comme lentes. Les transformations du premier groupe se produisent tellement vite que la phase parente (stable à haute température) ne peut être retenue à température ambiante, alors que les transformations lentes permettent de figer la

phase parente métastable par une trempe. Cette classification est cependant limitée en termes de preuves expérimentales. Une vraie transformation displacive survient par glissements d'interfaces entre phases parente et nouvelle, qui sont essentiellement des cisaillements. Une transformation purement displacive ne pourrait jamais figer la phase parente quelle que soit la vitesse de trempe.

d. Unification des classifications

Les paramètres fondamentaux, exposés précédemment et en fonction desquels les transformations de phases peuvent être classées, sont synthétisés dans le schéma ci-après de la Figure I-5.

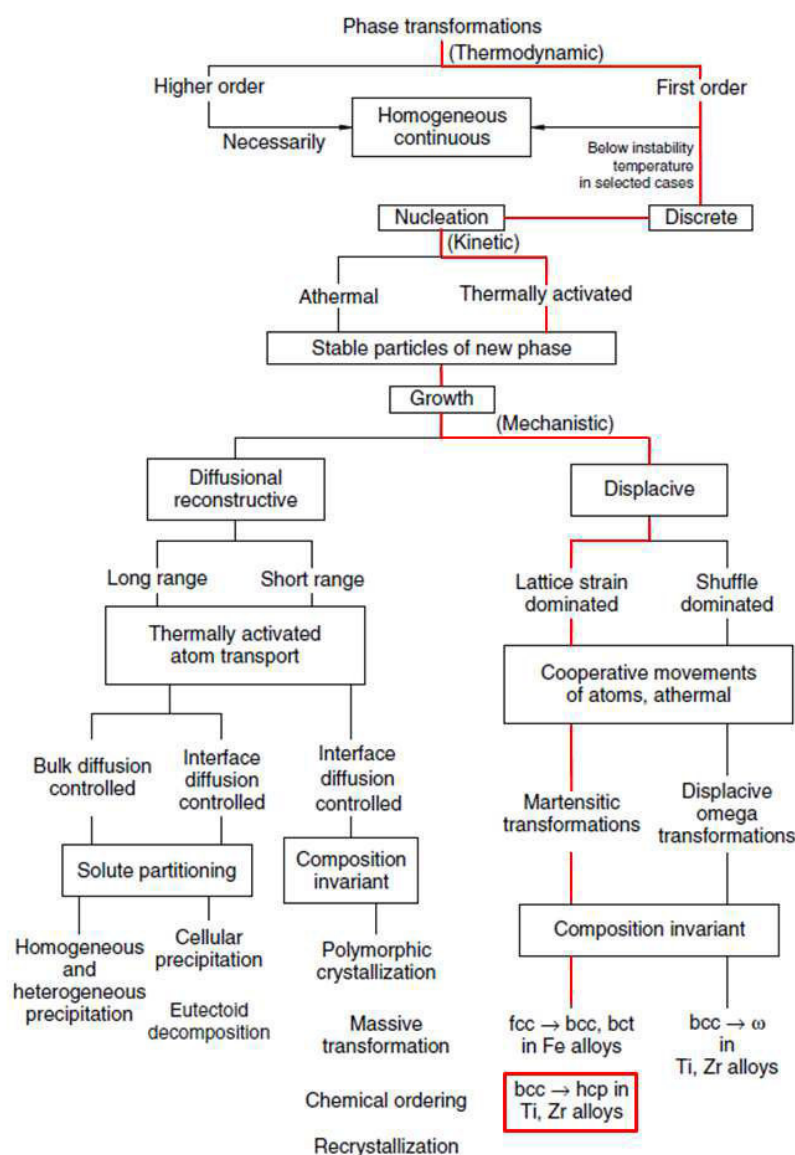


Figure I-5 : Schéma de classification des transformations de phases

En premier lieu, la transformation est soit homogène (continue) soit discrète (critère thermodynamique). Les transformations de premier ordre sont discrètes et pour les ordres supérieurs, elles sont continues c'est-à-dire que les variables, enthalpie, entropie et volume

spécifique varient graduellement à la température de transition. Par opposition, les transformations discrètes se produisent par la germination de la phase nouvelle qui peut être thermiquement activée ou non (critère cinétique) puis se poursuivent par la croissance des germes au sein de la phase parente. Les deux phases sont séparées par une interface qui correspond au front de transformation de phases. Le déplacement de cette interface nécessite soit la diffusion des atomes soit des mouvements synchronisés de ceux-ci (critère mécanique). Si la transformation s'opère par déformation du réseau, elle peut être contrôlée par un cisaillement ou par des réarrangements d'atomes. Il est à noter que les mouvements des atomes ne sont pas aisés à observer. Les aspects cristallographique, morphologique ou encore cinétique de la transformation de phases sont établis à travers les observations portant sur les relations d'orientation, la correspondance des réseaux cristallins, parent et nouveau, la forme de l'ancienne et de la nouvelle phase, etc. Cette discussion amène à conclure que la transformation de phases dans les alliages de zirconium est de type martensitique car elle respecte les relations de Burgers définies plus tard dans ce chapitre. Cependant elle est aussi partiellement diffusive car les observations expérimentales montrent la ségrégation de précipités entre les lamelles de phase α .

1.2.2. Comparaison entre les transformations martensitique et diffusive

Les transformations martensitiques, aussi appelées displacives, sont caractérisées par un certain nombre de paramètres thermodynamiques, cristallographiques, mécaniques et cinétiques. Ils sont définis dans les paragraphes suivants. Les transformations diffusives sont essentiellement basées sur la diffusion des atomes ou molécules. La transformation de phases dans les alliages de zirconium, dite de Widmanstätten, se trouve être une transformation à la fois displacive et aussi diffusive.

a. Thermodynamique

i. Transformation martensitique

Pour un métal pur, la transformation de phase, réalisée en interdisant toute variation de volume de l'éprouvette, est gouvernée par la variation d'énergie libre de Helmholtz (F) qui est une fonction de la température et du volume maintenu constant. Dans les alliages, la transformation martensitique conserve la composition de la phase parente dans la phase produite. Ainsi, la variation d'énergie libre qui pilote la transformation martensitique est définie entre la phase martensitique et la phase parente en gardant fixe la composition, donc celle de la phase parente. De ce point de vue, la transformation martensitique d'un alliage s'apparente au cas simple de la transformation de phases d'un corps pur. Pour un refroidissement rapide qui interdit le partage des constituants, il en résulte que la transformation peut intervenir (thermodynamiquement) à partir de la température T_0 , pour laquelle les énergies libres molaires des deux phases sont égales pour la composition qui reste figée. En pratique, les transformations martensitiques, comme toutes les transformations de

premier ordre, ne commencent pas dès qu'elles sont thermodynamiquement possibles (à T_0) mais à une température inférieure appelée température de transformation martensitique (M_s). La différence $T_0 - M_s$ représente la « surfusion » nécessaire pour amorcer la transformation. Pour certains aciers, cette différence est d'environ 200 °C et pour les alliages de titane ou de zirconium, elle est plus faible, d'environ 50 °C seulement. Cette surfusion est nécessaire pour compenser les énergies s'opposant à la transformation telles que :

- l'énergie d'interface entre la martensite et la phase parente ;
- l'énergie élastique stockée dans l'arrangement des phases parente et martensite lors des changements de la forme et du volume dus à la transition ;
- l'énergie dissipée par la déformation plastique des deux phases ;
- la force motrice nécessaire à la propagation rapide des interfaces entre martensite et phase parente.

Outre cette variation d'énergie libre nécessaire pour amorcer la transformation, une contrainte appliquée peut éventuellement contribuer à la force motrice. En effet la formation d'une lamelle martensitique placée sous contrainte conduit à une petite variation d'énergie mécanique qui peut être positive ou négative en fonction de la nature de la contrainte et de l'orientation morphologique de la lamelle. Compte tenu de ces considérations concernant les énergies motrices et les énergies s'opposant à la transformation, un bilan énergétique peut-être établi pour l'initiation de la transformation martensitique :

$$v\Delta f + \frac{v}{2}\sigma_a:\varepsilon \geq A_s\Gamma + \frac{1}{2}vE'\varepsilon^2 + E_p \quad (\text{I-3})$$

où

v = volume de la lamelle martensite

A_s = aire de la lamelle martensite

Δf = variation d'énergie libre, par unité de volume, lors de la transformation martensitique

σ_a = tenseur de contrainte appliquée

ε = cisaillement unique de la phase parente pour une transformation de cisaillement simple

Γ = énergie d'interface par unité de surface, entre les lamelles martensitiques et la phase parente

E' = module de cisaillement de la phase parente

E_p = énergie dissipée dans la déformation plastique et dans l'avancement rapide de l'interface de la nouvelle phase

L'énergie motrice doit, bien évidemment, excéder les énergies s'opposant à la transformation pour que cette dernière ait bien lieu. La vitesse de croissance des lamelles martensitiques est de l'ordre du tiers de la vitesse de propagation du son dans la phase parente. Pour une

transformation totalement displacive, par exemple dans les aciers, elle est de l'ordre de 1000 m.s^{-1} .

ii. Transformation diffusive

Quant à la transformation diffusive, elle est gouvernée par la diffusion des atomes ou molécules. Dans un cristal solide, les atomes occupent des emplacements bien définis, cependant ils oscillent autour de leur position d'équilibre avec une certaine amplitude qui s'accroît avec la température. Il existe plusieurs mécanismes de diffusion des atomes mais dans un corps solide le plus fréquent est celui qui fait intervenir les lacunes ou plus généralement les défauts cristallins. La densité de ceux-ci augmente avec la température ce qui facilite la diffusion des atomes. La diffusion des atomes suit les lois de Fick :

$$J = -D \frac{\partial c}{\partial x} \quad ; \quad \frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial c}{\partial x} \right) \quad (\text{I-4})$$

où J est le flux de la matière le long de la direction x , D est le coefficient de diffusion qui dépend de la nature des atomes et $\frac{\partial c}{\partial x}$ est le gradient de concentration le long de la direction x .

$$D = D_0 e^{-Q/RT} \quad (\text{I-5})$$

où D désigne la variation (empirique) du coefficient de diffusion avec la température, D_0 est une constante et Q est l'énergie d'activation de la diffusion.

L'évolution du coefficient d'autodiffusion suivant une direction du plan basal du réseau du zirconium en fonction de la température est présentée sur la Figure I-6a. Les évolutions des coefficients de diffusion d'éléments d'alliage ou d'impuretés dans la phase α des alliages de zirconium sont présentées sur la Figure I-6b.

L'évolution du coefficient d'autodiffusion du zirconium en phase α dévie de la loi d'Arrhenius, ce qui peut être imputé soit à une diminution de l'énergie d'activation quand la température augmente et s'approche de la température de transformation en β , soit à une perturbation de l'autodiffusion par des paires lacunes-impuretés.

Les coefficients de diffusion diffèrent grandement d'un élément à l'autre à la même température. Leur connaissance est importante car la cinétique des transformations diffusives est largement pilotée par la vitesse de diffusion des éléments d'alliage lors de leur partage entre les deux phases suivant leur caractère alphagène ou bêtagène.

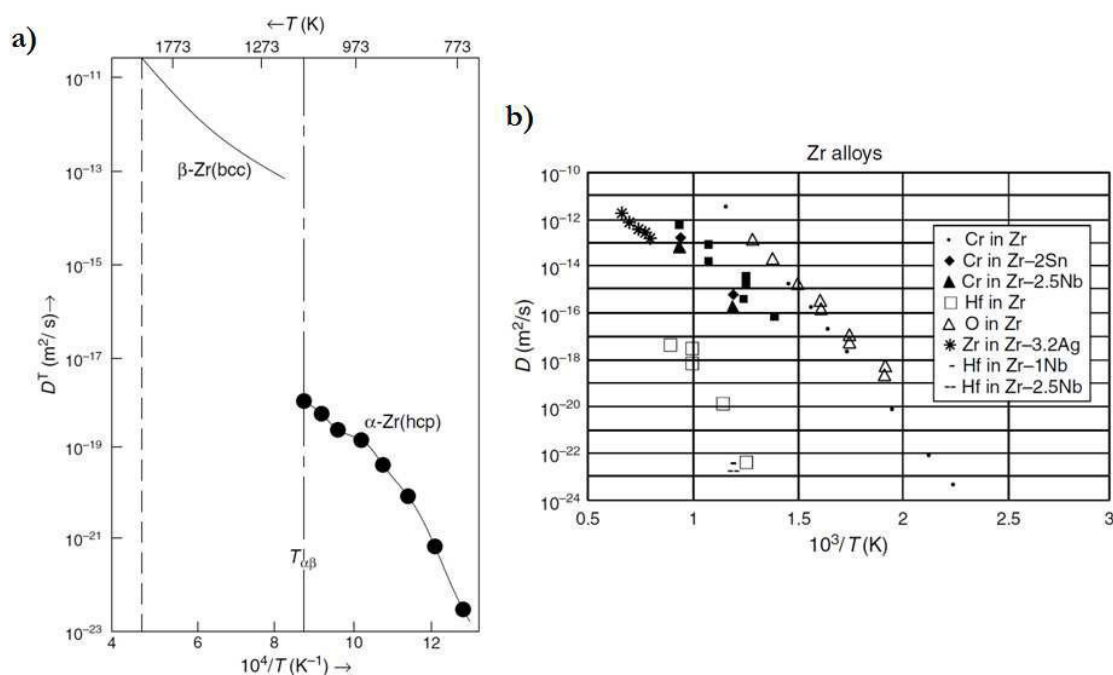


Figure I-6 : a) Coefficient d'autodiffusion du zirconium en fonction de la température ; b) coefficient de diffusion de certains éléments dans les alliages de Zr en phase α

b. Distorsion de Bain

La transformation martensitique crée des reliefs à la surface d'un échantillon préalablement poli et c'est à partir de l'observation des déplacements de lignes de référence – en surface qu'il a été conclu que la transformation ponctuelle associée à cette transformation de phases était affine. Elle peut donc s'exprimer sous la forme d'un tenseur. De plus, l'interface, plan d'habitat, entre les lamelles de martensite et la matrice austénitique demeure plane, ce qui indique que l'interface est un plan invariant de la transformation, c'est-à-dire qu'il n'est ni déformé ni tourné.

Il existe des relations d'orientation entre la phase parente et la phase fille. Le concept de déformation du réseau cristallin a été introduit par Bain (1924) qui décrit la transformation des aciers du réseau cfc de l'austénite en réseau quadratique centré (qc) de la martensite comme un simple déplacement homogène des atomes. Le tenseur de déformation du réseau, aussi appelé tenseur de distorsion de Bain, résulte d'un calcul purement géométrique et ne dépend donc que des paramètres de maille des phases allotropiques. Cette déformation est dite homogène dans le sens où il est toujours possible de sélectionner trois axes orthonormés (Figure I-7 a) et qui restent orthonormés après la transformation et ceci indépendamment de l'espace. Ce sont les axes principaux de la transformation. Bain représente la déformation de transformation de phases comme une déformation transformant une sphère en un ellipsoïde (Figure I-7d). La condition nécessaire et suffisante, selon Banerjee, est que l'un des axes reste invariant alors que les deux autres axes subissent une déformation respectivement positive et négative.

Le tenseur de la distorsion de Bain est alors sous la forme

$$B = \begin{bmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_2 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3 \end{bmatrix} \quad (\text{I-6})$$

Cependant, en général, la distorsion de Bain diagonale n'est pas suffisante pour décrire la transformation, il faut y ajouter un cisaillement (ou un maillage) laissant le réseau invariant. Dans le cas d'un cisaillement, la phase parente engendre une seule orientation de cristaux martensitiques alors qu'une macle engendre des orientations jumelles. En effet, le matériau a tendance à restaurer la symétrie de la phase parente, perdue lors de la transformation allotropique. La distorsion totale de la transformation peut être exprimée par trois composantes de déformation : la déformation homogène de Bain, une rotation et le cisaillement. Ces trois composantes permettent de définir des relations d'orientations entre le grain parent et les grains issus de la transformation de phases. Les relations d'orientations peuvent être établies de plusieurs manières, le choix s'effectue en favorisant celles qui impliquent le minimum de distorsion et de rotation. Pour les aciers, les différents auteurs parlent de relation d'orientation de Burgers mais aussi de Kurdjumow-Sachs (K-S), Nishiyama-Wasserman (N-W) ou de Greninger-Troiano (G-T).

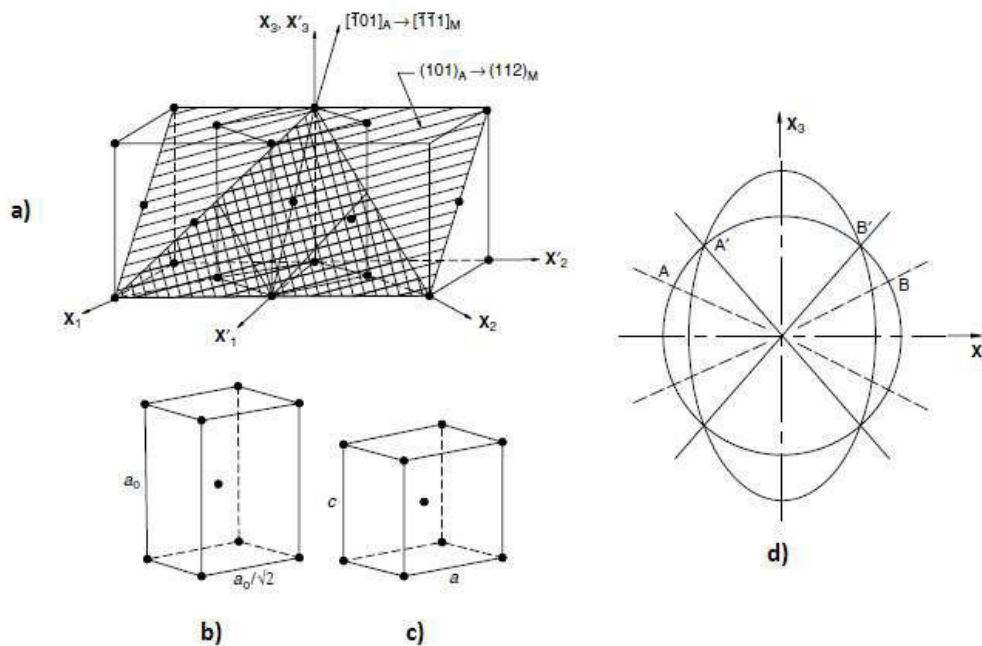


Figure I-7 : Transformation austénite-martensite a), b) et c) : correspondances des réseaux fcc et cc d) déformation homogène de Bain

Dans les alliages de zirconium, il est connu que la transformation de phases $\beta \rightarrow \alpha'$ martensitique suit les relations de Burgers.

c. Microstructure de trempe

La morphologie des grains martensitiques est de type lamellaire. Les facteurs qui contrôlent la morphologie des lamelles sont essentiellement les groupes de symétrie des cristaux parents et martensitiques, les contraintes entre lamelles, les séquences de formation des différentes générations de nouveaux grains et la nature des plans invariants. En effet, en germant, les lamelles de différentes orientations créent des contraintes mais celles-ci se compensent entre elles et les déformations qui en résultent réduisent l'énergie de déformation du système : c'est ce que l'on appelle l'auto-accommodation. La taille d'une lamelle de martensite est très faible et il est difficile de l'observer au microscope optique. Cependant, ces lamelles de martensite ont tendance à s'aligner parallèlement entre elles et à former des colonies, et de ce fait la microstructure devient observable. La formation de la martensite se décompose en plusieurs générations de colonies de lamelles. Les colonies de lamelles sont appelées des blocs, ces blocs, accolés entre eux, forment des paquets et un grain parent est décomposé en différents paquets [19] (Figure I-8). Les caractères morphologiques ont une grande influence sur certaines propriétés de ces aciers, notamment la résistance et la dureté du matériau.

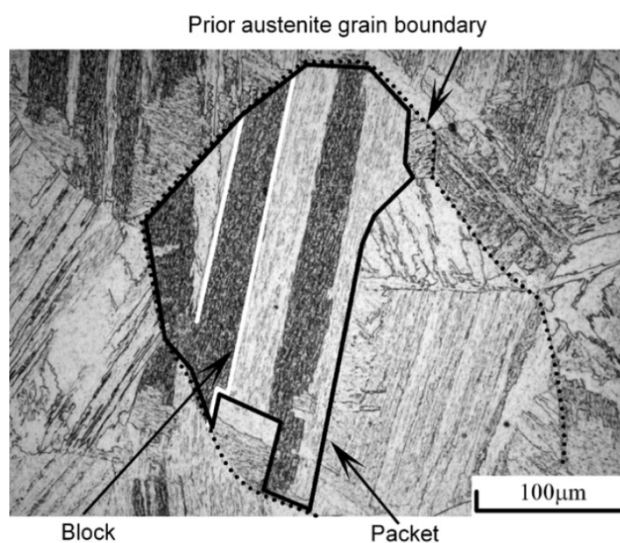


Figure I-8 : Micrographie optique d'une microstructure de martensite au sein d'un ex-grain austénitique parent [19]

Certains auteurs ont étudié la microstructure des martensites en 3D. La reconstruction 3D se fait par polissage successifs et les plages sont ensuite observées à l'aide d'un MEB couplé avec une analyse EBSD afin d'obtenir en plus l'orientation des colonies de lamelles [20][21]. L'analyse de cette microstructure en 3D pourra éventuellement permettre de comprendre la relation entre la microstructure des lamelles et les propriétés mécaniques du matériau telles que la dureté et la résistance mécanique. La Figure I-9 présente un exemple de microstructure en 3D d'une martensite à haute teneur en carbone.

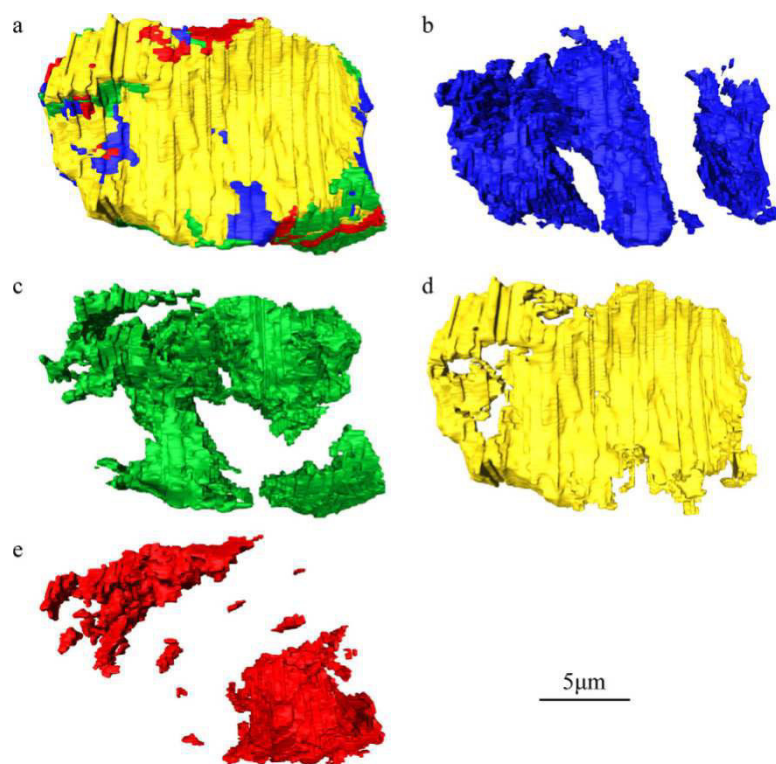


Figure I-9 : Images 3D des paquets de martensite à haute teneur en carbone au sein d'un ex-grain austénitique parent : (a) microstructure complète (b), (c), (d), (e) paquets isolés [21]

Quant à la morphologie des lamelles dans les alliages de Ti et Zr, elle dépend du type de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$, c'est-à-dire soit martensitique, soit diffusif [22]. La germination des lamelles dépend à la fois de la vitesse de la trempe mais aussi de la présence des éléments d'alliage [23]. La structure martensitique ne peut être obtenue que pour une vitesse de trempe supérieure à $2000 \text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$. De 2 à $200 \text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$, la trempe produit une structure bainitique lamellaire dite de Widmanstätten. Ces lamelles présentent deux types de morphologie qui dépendent des sites de germination. Les particules insolubles dans la phase β telles que ZrC sont des sites de germination pour les lamelles α lors du refroidissement [24]. À partir de cette germination se forme une structure en vannerie. En l'absence de ces particules, la germination s'effectue aux joints de grains β pour former des structures en platelets parallèles (Figure I-10). Lors du refroidissement, les éléments bêtagènes sont rejetés entre les lamelles α , et finissent par précipiter aux joints des lamelles [25].

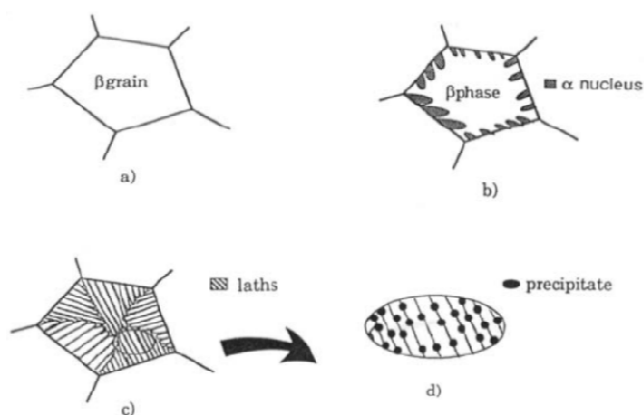


Figure I-10 : Schéma simplifié de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ du Zircaloy-4 avec germination sur les joints de grains β . a) avant la transformation, b) transformation $\beta \rightarrow \alpha$, c) microstructure après transformation, d) localisation des précipités le long des joints inter-lamelles [26]

Comme pour les aciers, l'analyse de la microstructure en 3D des alliages de Ti et Zr est importante, elle permet de mieux caractériser les hétérogénéités des déformations, d'étudier la sélection des variants, etc. Certains auteurs l'ont effectuée sur des alliages de Ti α/β [27][28]. Ces alliages α/β de Ti sont plus aisés à observer en 3D étant donné la présence des deux phases, alors que les alliages de Zr sont, en général, en quasi-totalité en phase α . La Figure I-11 présente des exemples de morphologie de la phase α dans un alliage de Ti, en particulier les grains α qui ont germé aux joints de grains β .

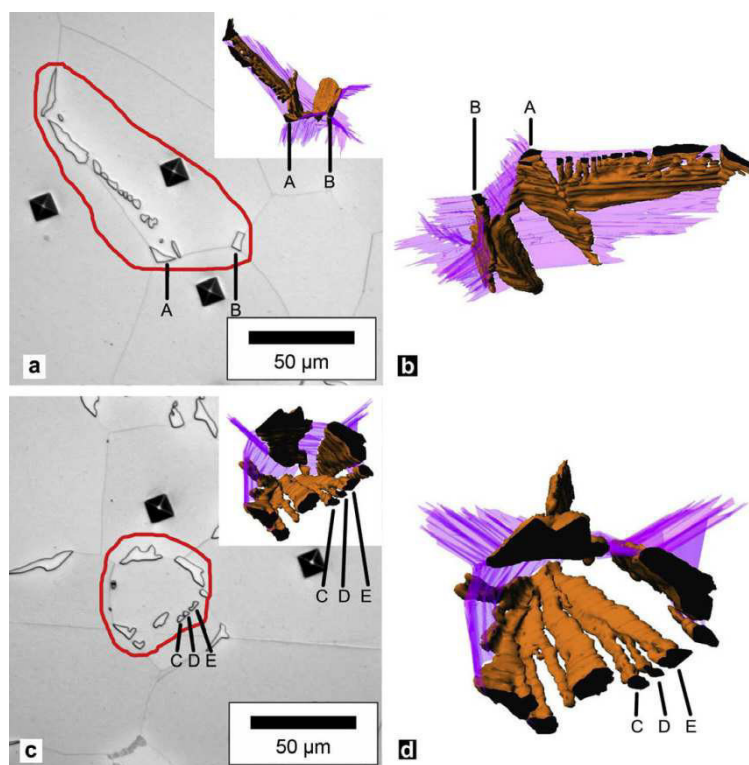


Figure I-11 : Micrographies en 2D (a et c) et 3D (b et d) des particules de phase α dans un alliage de Ti [28]

Jusqu'à maintenant, aucun auteur n'a étudié la microstructure en 3D des alliages de Zr à l'état brut de trempe, ce qui est certainement dû à la complexité du travail mais aussi du peu d'intérêt de l'étude, car la microstructure finale des produits est rarement de type Widmanstätten. Cependant avec les observations en 3D des grains martensitiques et de la phase α dans les alliages α/β Ti, la microstructure 3D d'une colonie de lamelles, dans les alliages de zirconium, serait enchevêtrée.

I.3. Transformation de phases dans les alliages de zirconium

Pour les alliages de zirconium, la transformation de phases est de type martensitique étant donné qu'il existe une relation entre les phases β et α , mais partiellement diffusive car c'est la diffusion des éléments d'alliage qui contrôle la transformation. Cette transformation est dite de Widmanstätten. Toutefois, une trempe sévère permet de supprimer la composante diffusive. Ceci dit, elle ne peut être réalisée dans l'industrie.

La température de la transformation dépend de la composition en éléments bêtagènes et alphagènes. La température M_s est environ 50°C en-dessous de la température de transition à l'équilibre. Cet écart (surfusion) correspond à la force motrice nécessaire pour déclencher la transformation martensitique. Dans les alliages de zirconium, il est bien inférieur à celle nécessaire pour la transition austénite \rightarrow martensite, soit dans les aciers environ 200°C au-dessous du transus [16]. Cela suppose que les forces s'opposant à la transformation de phases sont bien plus faibles dans les alliages de zirconium que dans les aciers martensitiques. L'enthalpie de la transformation de phases est voisine de 1125cal.mol^{-1} [29].

La transformation $\beta \leftrightarrow \alpha$ s'effectue en suivant les relations d'orientation de Burgers [30] et ceci, indépendamment du type de transformation. Un plan $\{110\}_\beta$ de la phase β et le plan $\{0001\}_\alpha$ de la phase α doivent être parallèles et les deux directions $\langle 111 \rangle_\beta$ de la phase β et $\langle 11\bar{2}0 \rangle_\alpha$ de la phase α , sont parallèles. $\{110\}_\beta$ et $\{0001\}_\alpha$ correspondent aux plans les plus compacts de chacun des deux réseaux. $\langle 111 \rangle_\beta$ et $\langle 11\bar{2}0 \rangle_\alpha$ correspondent aux directions denses de chacun des deux réseaux (Figure I-12).

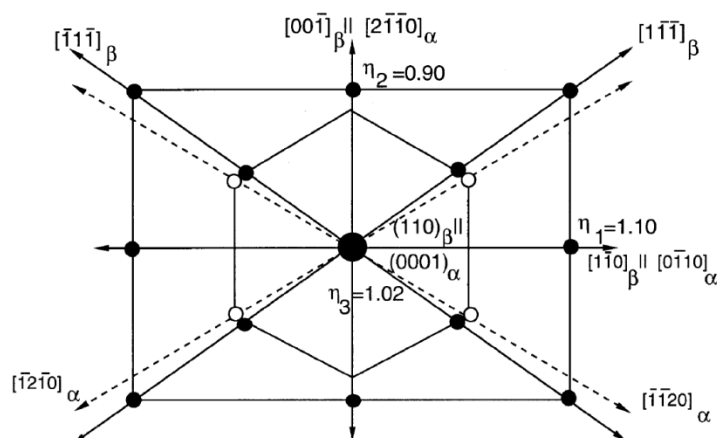


Figure I-12 : Schéma de la relation cristallographique de Burgers entre les phases α et β ainsi que de la déformation associée à la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ [22]

Burgers propose de décrire le mécanisme de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ en trois étapes.

- Dans une première étape, cinq mailles cubiques centrées sont redécoupées (virtuellement) pour former une maille prismatique (Figure I-13). La longueur de l'arête de la structure cubique centrée de la phase β est noté a et a' celle de l'arête des hexagones de la structure hexagonale compacte de la phase α . D'autre part, les grandes diagonales dans le réseau cubique font un angle α et c' la hauteur du réseau hexagonal.

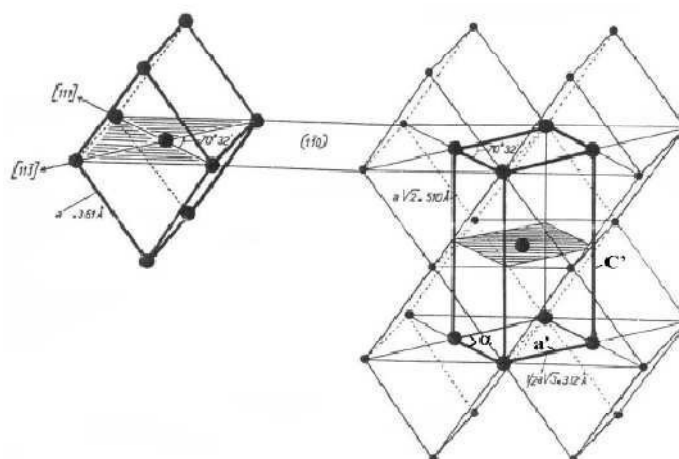


Figure I-13 : Constitution de la maille prismatique à partir du réseau cubique [30]

avec

$$a' = a \frac{\sqrt{3}}{2} = 3,12 \text{ \AA}$$

$$c' = a\sqrt{2} = 5,10 \text{ \AA}$$

$$\alpha = 70^{\circ}32'$$

- Dans une deuxième étape, l'angle α , qui est au départ de $70^{\circ}32'$, diminue jusqu'à atteindre 60° , ce qui entraîne un cisaillement simple dans un plan de type $\{112\}_g$ parallèle au

plan perpendiculaire à l'axe c' et selon la direction de type $\langle 11\bar{1} \rangle_\beta$ contenue dans ce même plan. Les deux arêtes de la base de la maille prismatique ne forment plus un losange et leurs longueurs sont désormais différentes (a_1' et a_2'). Selon le plan et la direction de cisaillement, une des deux arêtes s'allonge alors que la seconde reste inchangée (voir Figure I-14). Les nouveaux paramètres de maille sont :

$$a_1' = a \frac{\sqrt{3}}{2} = 3,12 \text{ \AA}$$

$$a_2' = 3,40 \text{ \AA}$$

$$c' = a\sqrt{2} = 5,10 \text{ \AA}$$

$$\alpha = 60^\circ$$

– Enfin, dans la dernière étape, l'axe c' se dilate, les atomes situés dans un plan (0001) sur deux, se déplacent le long de $[10\bar{1}0]$. Les atomes situés le long des arêtes du réseau prismatique se déplacent de manière à former un losange à la base du prisme.

Lors de la deuxième étape de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$, il existe deux plans et deux directions de cisaillement possibles pour chacun des 6 plans $\{110\}_\beta$ initiaux du réseau cubique β , ce qui conduit à 12 orientations de variants équivalents de la phase α générés à partir d'un grain β . Les variants issus d'un même plan $\{110\}_\beta$ sont appelés les variants jumeaux.

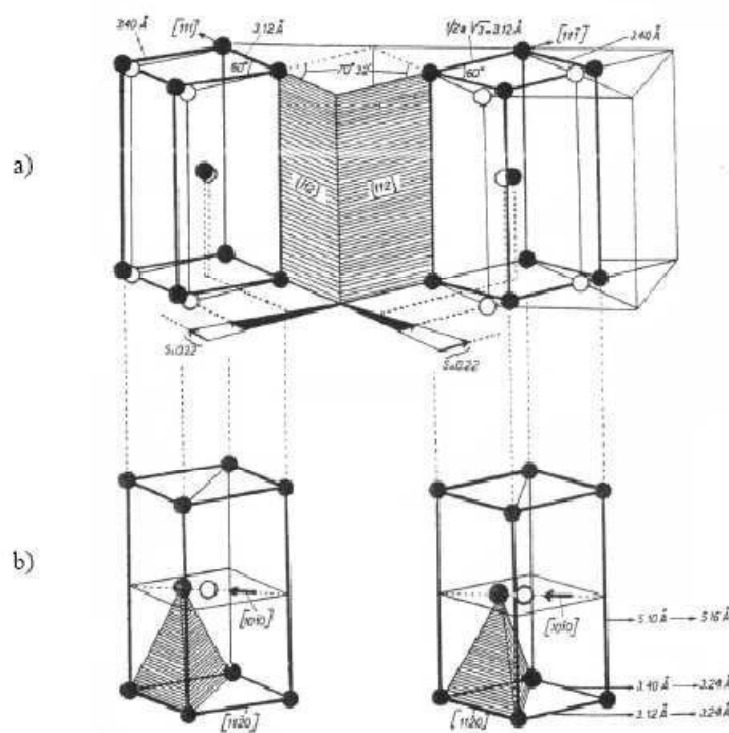


Figure I-14 : Formation de la maille hexagonale : a) cisaillement sur un plan de type $\{112\}_\beta$; b) contraction/dilatation et déplacement d'atomes [30]

Les plans $\{110\}_\beta$ sont désorientés les uns par rapport aux autres soit de 90° soit de 60° . Cependant la présence des variants jumeaux introduit d'autres angles de désorientation : soit $10,5^\circ$ (désorientation entre deux variants jumeaux), $60,8^\circ$ et $63,26^\circ$ [31].

À partir de cette transformation, est engendrée une structure lamellaire dite de Widmanstätten, comme mentionné dans le paragraphe précédent. Ces structures lamellaires présentent deux morphologies extrêmes, dans lesquelles les lamelles sont soit enchevêtrées entre elles, en « vannerie » (Figure I-15a) soit disposées parallèlement les unes par rapport aux autres, en « platelets parallèles » (Figure I-15b). En pratique, les microstructures observées sont souvent intermédiaires entre ces deux types. L'épaisseur des lamelles dépend de la vitesse de refroidissement [32] (Figure I-16). Ces deux types de morphologie diffèrent par leurs sites de germination : les platelets parallèles germent aux joints de grains β et les lamelles en vannerie germent à partir des particules insolubles dans la phase β . Les éléments d'alliage ont une influence importante sur cette microstructure. Nous avons précédemment cité l'effet des carbures [24] dans §I.2.2.c, cependant d'autres impuretés telles que Si et P [33] servent de germes.

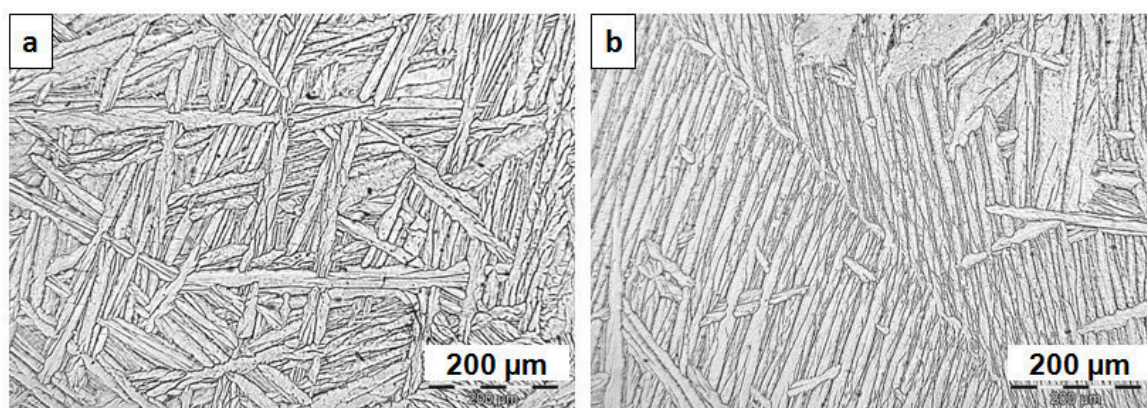


Figure I-15 : Microstructures de trempe du Zircaloy-4 a) lamelles en vannerie b) lamelles en platelets parallèles

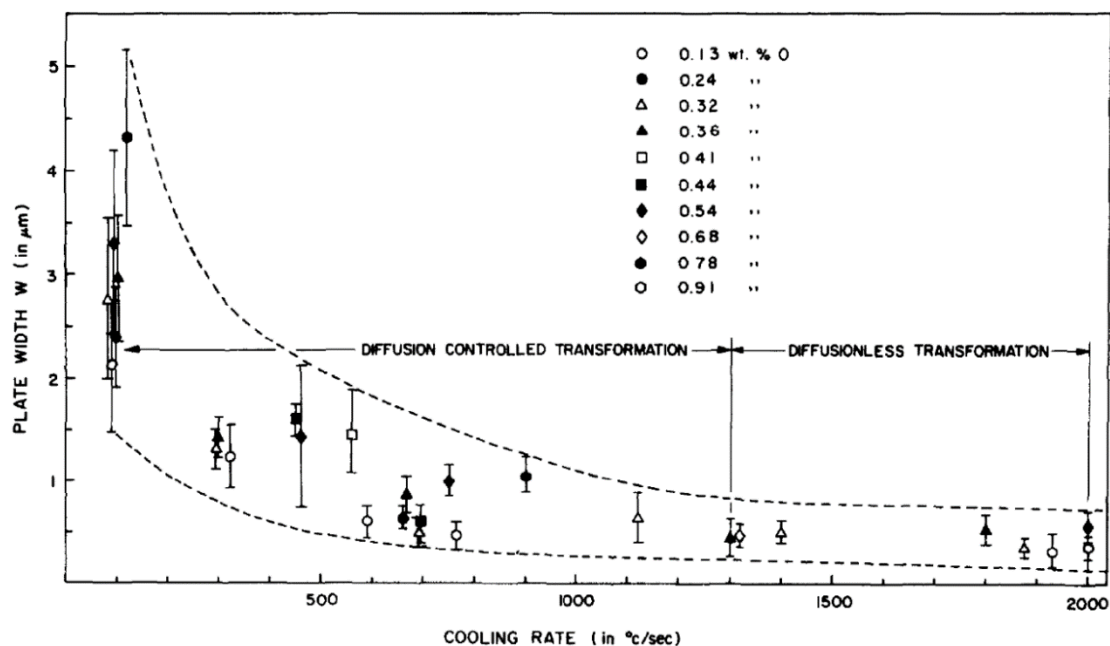


Figure I-16 : Variation de l'épaisseur des lamelles en fonction de la vitesse de trempe [32]

L'effet de l'oxygène sur la morphologie n'est, quant à lui, pas très bien défini. Certaines études montrent que l'oxygène favorise la formation de lamelles relativement épaisses et arrangées en platelets parallèles, d'autres montrent qu'il n'y a pas d'influence ni sur l'épaisseur ni sur la morphologie des lamelles. Woo et *al.* ont montré que dans l'alliage Zircaloy-4, à faible vitesse de trempe ($\sim 90 \text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$) le caractère d'être en platelets parallèles augmente considérablement avec la concentration en oxygène, de 0,1 à 0,9 % massique (Figure I-17a à c) [32]. Aux grandes vitesses de trempe ($\approx 700 \text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$ et $\approx 2000 \text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$), l'augmentation de la concentration en oxygène engendre des lamelles plus épaisses (Figure I-17d à f). Ces auteurs ont aussi observé qu'avec la croissance de la vitesse de trempe, le caractère vannerie est favorisé. Ils expliquent que la diffusion de l'oxygène n'a pas le temps de s'effectuer quand la vitesse de trempe est élevée, ce qui favorise la germination au sein des grains β et non aux joints de grains. Les précipités en phase α ségrégent alors dans les joints des grains α . Cependant, aux très fortes vitesses, l'oxygène ne diffuse que très difficilement, et cette diffusion limitée engendre des lamelles relativement épaisses.

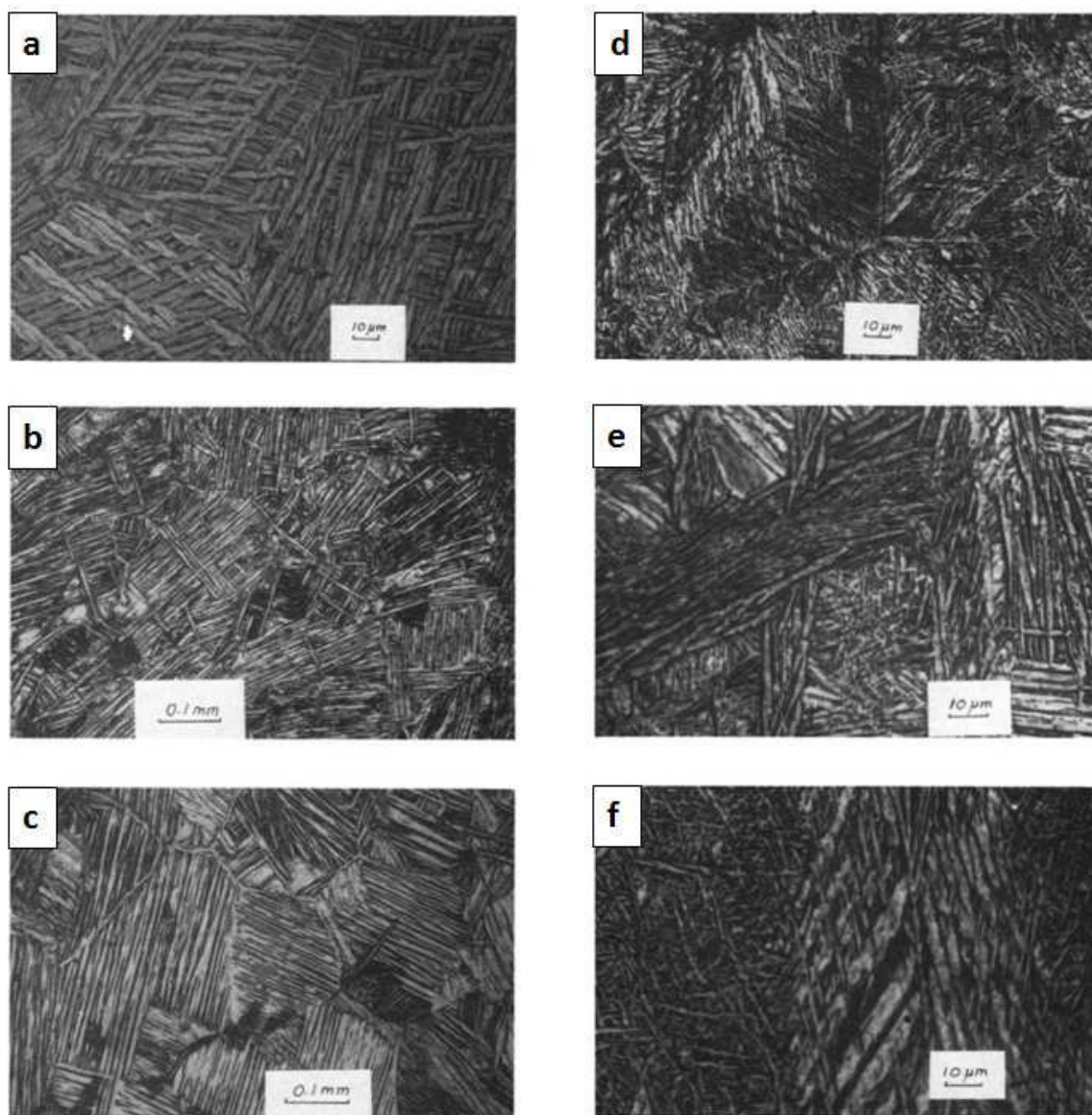


Figure I-17 : Microstructures des alliages Zircaloy-4-O en fonction de la concentration d'oxygène et de la vitesse de trempé : (a) 0,13 wt% O trempé à $\approx 90\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; (b) 0,54 wt% O trempé à $\approx 90\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; (c) 0,78 wt% O trempé à $\approx 90\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; (d) 0,13 wt% O trempé à $\approx 700\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; (e) 0,78 wt% O trempé à $\approx 700\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; (f) 0,91 wt% O trempé à $\approx 2000\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$ [32]

À partir de ces études, Massih *et al.* [34] ont développé un modèle faisant intervenir divers paramètres cités dans le Tableau I-5 afin de prédire la microstructure des lamelles de type Widmanstätten. Ce modèle fait intervenir la diffusion de l'oxygène lors de la transformation de phases au refroidissement. Il est rappelé que dans la transformation des microstructures de Widmanstätten, l'oxygène alpha-gène doit diffuser de $\beta \rightarrow \alpha$ au fur à mesure de la transformation, ce qui distingue celle-ci d'une transformation martensitique, qui serait purement displacive.

Tableau I-5 : Paramètres pris en compte dans le modèle de formation et de développement des lamelles [34]

Tension d'interface	$0,25 \text{ J.m}^{-2}$
Distance interatomique	5.10^{-10} m
Constante de diffusion	$1,65.10^3 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$
Énergie de transformation	$2,29.10^5 \text{ J.mol}^{-1}$
Température $\beta \rightarrow \alpha + \beta$	1253 K
Température $\beta + \alpha \rightarrow \alpha$	1073 K
Épaisseur initiale des lamelles	1.10^{-8} m
Constante des gaz parfaits	$8,3145 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$

Hong *et al.* ont cependant obtenu des résultats contradictoires [35]. Ces derniers auteurs ont étudié l'effet de la concentration d'oxygène, variant de 0,1 à 0,5 % massique, dans des Zircaloy-4 trempés à $1000 \text{ }^\circ\text{C.s}^{-1}$. Les résultats (Figure I-18) n'ont montré aucun effet de la teneur en oxygène ni sur l'épaisseur des lamelles ni sur les caractères morphologiques de celles-ci.

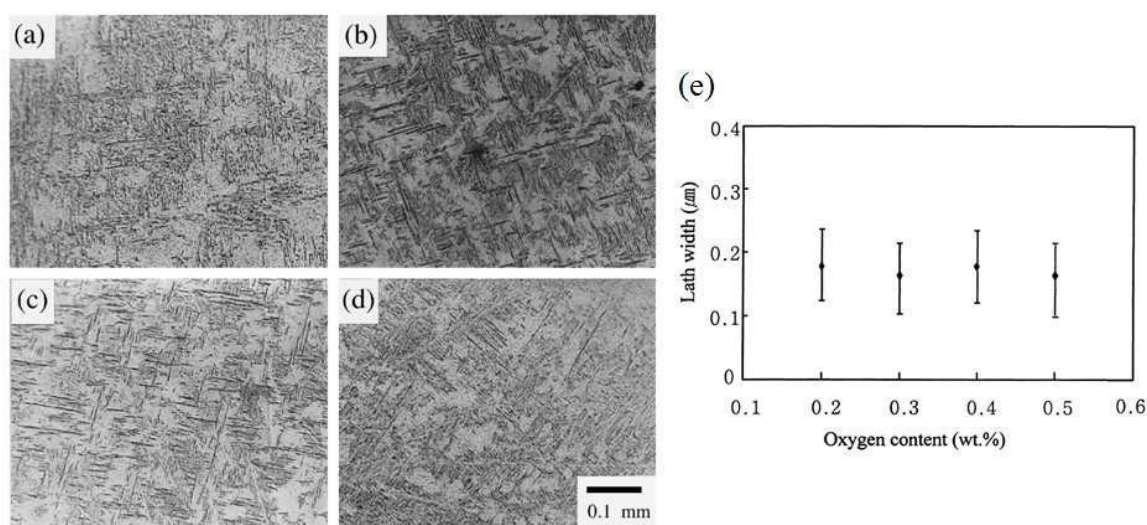


Figure I-18 : Microstructures des alliages de Zircaloy-4 trempé à $1000 \text{ }^\circ\text{C.s}^{-1}$ (a) avec 0,1 wt% O ; (b) 0,2 wt% O ; (c) 0,4 wt% O ; (d) 0,5 wt% O ; (e) évolution de l'épaisseur des lamelles en fonction de la teneur en oxygène [35]

Quant aux précipités qui forment les joints des lamelles α , Crépin *et al.* [25] montrent avec une étude menée au moyen d'observations au MEB et au MET, qu'ils forment un grand réseau complexe dans le matériau entre les lamelles α . Leur taille est de l'ordre de quelques micromètres et ils sont reliés entre eux par des « fins ponts » de l'ordre de 700 nm. Cependant la relation entre les précipités et la matrice n'a pas été établie, s'il en a une.

En ce qui concerne le matériau étudié dans la thèse et selon les données de la société Cézus, le chlore détermine la germination hétérogène des lamelles en platelets parallèles ou en

vannerie. La vitesse de refroidissement influe certes sur l'épaisseur des lamelles, cependant son influence sur la proportion des platelets parallèles et en vannerie n'est pas évidente.

Une structure grossière n'est pas favorable dans le produit fini, car elle entraîne une mauvaise dispersion des précipités : il faut des précipités bien répartis et suffisamment gros pour obtenir une bonne résistance à la corrosion. Les traitements qui suivent la trempe ont donc comme impératif de fragmenter ces lamelles puis de permettre une bonne recristallisation du matériau de manière à obtenir une structure équiaxe et homogène. Or, les essais montrent que les structures en platelets parallèles recristallisent moins bien que celles en vannerie. Cette irrégularité peut être la cause de défauts de laminage et de difficultés pour contrôler les tubes par ultrasons. En effet, les gros grains mal recristallisés peuvent être responsables d'échos ultrasonores perturbant les contrôles.

La mise en forme ultérieure du matériau impose donc l'obtention, après trempe, d'une microstructure lamellaire susceptible de recristalliser facilement. Afin de déterminer les paramètres pouvant favoriser celle-ci, une étude de caractérisation de la morphologie des lamelles, c'est-à-dire une méthode de quantification des caractères platelets parallèles et vannerie, a été menée dans cette thèse et est présentée dans le chapitre III.

La morphologie des lamelles est étroitement liée à leur orientation cristallographique. Tout d'abord, la croissance des grains α s'effectue essentiellement dans deux directions qui définissent le plan de la lamelle. La plus forte croissance suit une direction proche de $\langle 433 \rangle_\beta$ (Figure I-19) [22][36].

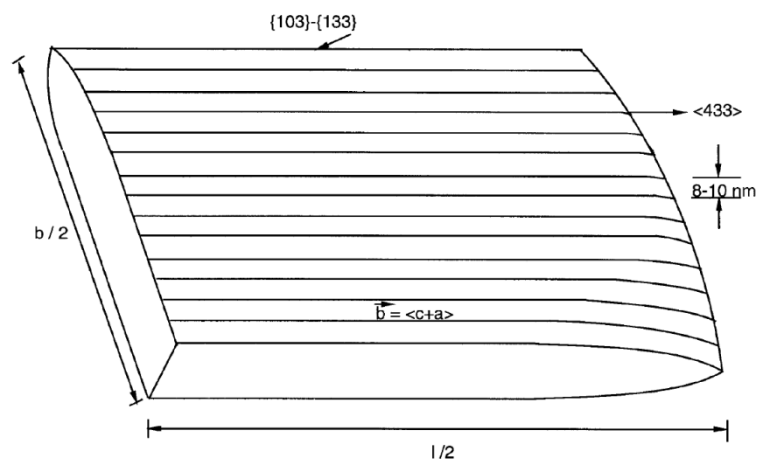


Figure I-19 : Schéma de la croissance des lamelles

Les dislocations s'alignent le long de la direction invariante lors de la transformation de phases et qui correspond à la direction de croissance maximale des lamelles α . Cela signifie que la normale au plan de la lamelle est proche de celle d'un plan prismatique de première espèce. Autrement dit, la maille hexagonale est couchée dans le plan de la lamelle. Le calcul des angles de désorientation entre toutes les directions $\langle 433 \rangle_\beta$ possibles d'une maille cubique

et ce qui correspondent donc aux angles entre les colonies de lamelles, a été effectué et le résultat est porté dans l'histogramme de la Figure I-20.

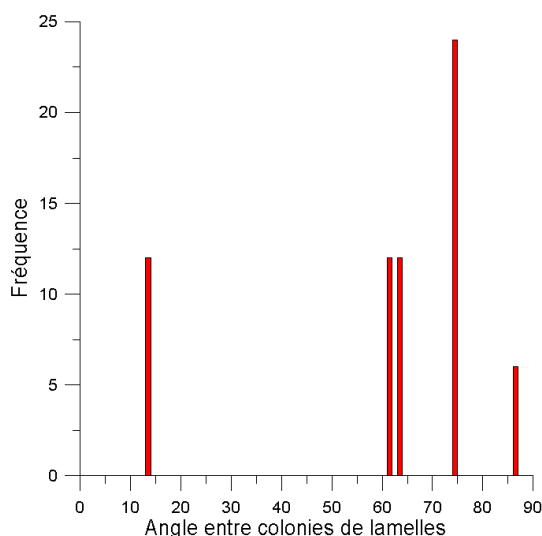


Figure I-20: Distribution des angles de désorientation entre les colonies de lamelles α

Dans les alliages de Ti, les variants jumeaux – les grains α qui germent à partir d'un même plan $\{110\}_\beta$ – ont une morphologie de lamelles qui se croisent en formant un angle proche de 90° [36], cet angle pouvant néanmoins différer selon la section observée dans l'échantillon. Des investigations sur la relation entre la morphologie des lamelles et les orientations des grains β ont été menées sur des alliages de Ti [37][38][39]. Quand deux grains β voisins partagent un même plan $\{110\}_\beta$ et qu'ils sont désorientés d'environ $10,5^\circ$, les grains α_{GB} , lamelles qui germent le long des joints de grains β , ainsi que les lamelles qui germent à partir du joint des grains β , c'est-à-dire de part et d'autre de ce dernier, ont la même orientation. Cette orientation respecte les relations de Burgers, le plan basal $(0001)_\alpha$ de ces grains α étant parallèle au plan $(110)_\beta$ commun aux deux grains β parents. Ce phénomène est appelé sélection des variants aux joints de grains. Sans aucune prise en compte de sélection d'orientation, les auteurs ont montré que géométriquement il y a une probabilité d'environ 9% que ce phénomène ait lieu. Ces observations montrent un lien étroit entre la morphologie des lamelles α et leur orientation, mais aussi l'orientation des grains β parents.

Un autre aspect à prendre en compte est la taille des grains β . Obasiet *al.* [39] ont mis en évidence une influence de la taille des grains β sur la sélection des variants α dans les alliages de titane. Les auteurs ont montré que la croissance des grains β favorise la sélection des variants aux joints des grains β . La cinétique de la croissance des grains β est donc à considérer. Celle-ci peut être maîtrisée soit en ajoutant des éléments d'alliage, soit en contrôlant la vitesse de la transformation de phases. La croissance des grains β suit une loi du type [40]:

$$\bar{G} = k't^{n'}$$

où \bar{G} est le diamètre moyen des grains considérés, n' et k' deux constantes qui dépendent de la température. Les auteurs précisent que la valeur maximale de n' est 0,5 et qu'en général, dans les métaux polycristallins la valeur moyenne de n' est de 0,4. Les auteurs ont déterminé une valeur de 0,435 pour les alliages de zirconium. Cependant, cette loi ne peut être utilisée dans le cadre d'une étude de croissance de grains où la taille initiale est non nulle. Dans ce cas, une loi de croissance classique

$$d^n - d_0^n = kt$$

sera plus appropriée.

Un grain β peut engendrer douze orientations (variants) de grains α différentes. Lors de la germination des lamelles au refroidissement, quels sont les critères qui peuvent influencer sur la sélection d'une orientation au détriment des autres ?

I.4. Sélection des variants

La sélection des variants a été très étudiée dans les transformations martensitiques des aciers bien plus que dans le Zr ou le Ti. Il existe trois relations d'orientations dans la transformation allotropique austénite \rightarrow martensite. Ces relations dépendent fortement de la teneur en carbone [41]. À faibles et moyennes teneurs en C, la transformation martensitique suit les relations d'orientation de Kurdjumow–Sachs (K–S), alors qu'à forte teneur en carbone elle suit les relations de Nishiyama–Wasserman (N–W). Les relations de Greninger–Troiano se situent entre les deux précédentes. D'une part, plus la teneur en C est élevée, plus les tailles des blocs et des paquets diminuent. D'autre part, à faible teneur en C, Morito *et al.* observent dans un paquet trois blocs parallèles, chacun présentant deux colonies de lamelles avec des orientations spécifiques aux relations de K–S et qui sont désorientées entre elles d'environ 10°. Alors qu'à forte teneur en C, les paquets contiennent six fins blocs d'une seule orientation de lamelles, les six blocs ayant différentes orientations.

Lors d'une transformation diffusive, la germination de la phase engendrée se produit à partir de certains sites préférentiels, tels que les joints de grains, les dislocations, les précipités [42]. La germination aux joints de grains s'effectue généralement en fonction de l'orientation des grains parents accolés au joint en question. Le variant engendré le plus probable est celui qui est le plus en cohérence avec les deux grains parents voisins en accord avec les relations d'orientation des systèmes considérés. La germination à partir des dislocations s'effectue parallèlement à la direction de celles-ci. Enfin, la germination à partir des inclusions ou des précipités dispersés dans la phase parente dépend de la nature de ceux-ci. S'ils sont incohérents avec la matrice parente, il n'y a aucun lien d'orientation entre la phase parente, le précipité et la phase engendrée. Cependant si les inclusions sont partiellement cohérentes avec la matrice parente, le germe doit non seulement respecter les relations d'orientation avec le grain parent mais doit aussi favoriser une bonne accommodation des réseaux cristallins à la fois avec la matrice et le précipité à partir duquel il croît. En conclusion, Furuhashi et Maki

[42] expliquent que la germination des grains issus d'une transformation diffusive dépend des sites de germination préférentiels et la sélection des variants se produit selon la distribution et l'orientation de ces derniers. La Figure I-21 montre à travers un schéma la germination de la phase fille selon la répartition des sites de germination, et de là s'il y a ou pas une forte sélection de variants.

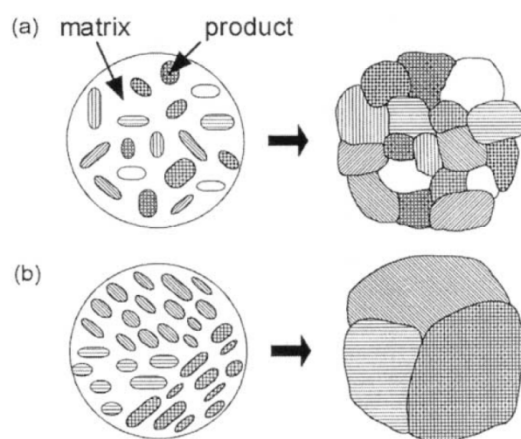


Figure I-21 : Microstructure développée par une transformation diffusive a) germination à partir de défauts orientés de façon aléatoire b) germination avec une forte sélection due à une distribution d'orientations non aléatoire des défauts [42]

Étant donné que, généralement en métallurgie, il est préférable d'avoir des grains fins afin d'obtenir des propriétés mécaniques satisfaisantes, ces inclusions incohérentes sont volontairement introduites pour servir de germes lors de la solidification.

Comme pour les aciers martensitiques, la morphologie et la cristallographie des lamelles dans les alliages de Ti et de Zr ont une grande influence sur les propriétés mécaniques du matériau [43]. Les propriétés des alliages de structure cristallographique hexagonale dépendent étroitement de leur texture cristallographique. Ceci est dû à l'anisotropie à l'échelle cristalline des propriétés [9] qui influe, entre autres sur, la limite d'élasticité, la dilatation thermique et la plasticité. Par exemple, une contrainte résiduelle a été mesurée par diffraction des rayons X, puis calculée par MacEwen *et al.* [44][45]. Elle est due à l'anisotropie des coefficients de dilatation de la phase hexagonale, elle est de l'ordre de 100 MPa et peut jouer un rôle important dans la transition élasto-plastique. Il est donc nécessaire de comprendre le développement de la texture au cours des différents cycles thermomécaniques que subit le matériau pour pouvoir maîtriser certaines de ses propriétés mécaniques [46][47][48][49][50].

Mise à part la première transformation de phases produite lors du refroidissement après solidification des billettes de zirconium qui est une transformation massive c'est-à-dire totalement diffusive [51] et ne présente aucune relation d'orientation entre la phase β et la phase fille α , les transformations $\beta \rightarrow \alpha$ respectent les relations de Burgers. Pour les alliages biphasés, typiquement l'alliage Ti-6Al-4V, l'orientation de la phase β présente à la température ambiante peut influencer la transformation allotropique au chauffage et aussi au

refroidissement qui suit [52]. Les étapes de fabrication conditionnent les transformations, la texture de la phase de départ influe sur celle qui est engendrée [53]. Les alliages de zirconium ne présentent généralement, après refroidissement, que de la phase α . Afin d'étudier la texture à haute température, certains auteurs se sont intéressés à reconstruire la phase parente à partir de la phase fille, utilisant les relations d'orientation des alliages étudiés. Les références [54][55][56] traitent de la reconstruction de la phase stable à haute température pour les alliages de Zr et les références [57][58] concernent les aciers.

Humbert *et al.* proposent d'utiliser une relation de déconvolution qui permet de prédire la texture de la phase β à partir de celle des grains α issus du refroidissement [55][56].

Cet accès à la texture de la phase stable à haute température peut permettre de mieux comprendre les phénomènes observés lors des cycles de transformation $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$.

Gey *et al.* ont montré dans leurs études du Zircaloy-4 extrudé dont la microstructure présente des grains α équiaxes, qu'une contrainte axiale, appliquée lors du chauffage, ne favorise pas la sélection des variants comme prévu [59]. Lors de la transformation $\alpha \rightarrow \beta$, une plasticité est induite sous l'action d'une contrainte axiale comprise entre 1,2 et 8,2 MPa. Cette déformation plastique, sous forme de cisaillement, induit un allongement de l'échantillon alors que sans contrainte, il avait tendance à se contracter. D'autre part, la contrainte modifie l'intervalle de température de la transformation $\alpha \rightarrow \beta$. Celle-ci commence 16 °C plus bas et se termine environ 16 °C plus haut que dans le cas sans contrainte. De plus, au-delà de 4,2 MPa, il apparaît un phénomène de fluage. La Figure I-22 présente les figures de pôles des plans basaux, prismatiques de 1^{re} et 2^e espèce de la phase α . La texture initiale du matériau est représentée dans la Figure I-22a. Après un passage $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$, sans contrainte appliquée au chauffage, les auteurs ont obtenu une texture plus prononcée (Figure I-22b). Cependant, avec l'application d'une contrainte axiale lors du chauffage, la texture après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ (Figure I-22c) ne diffère pas qualitativement de celle de l'état initial mais elle est nettement moins accentuée. Les auteurs ont conclu que la sélection des variants lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ est très forte après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$, cependant l'intensité de cette sélection diminue avec l'application d'une contrainte axiale lors du chauffage.

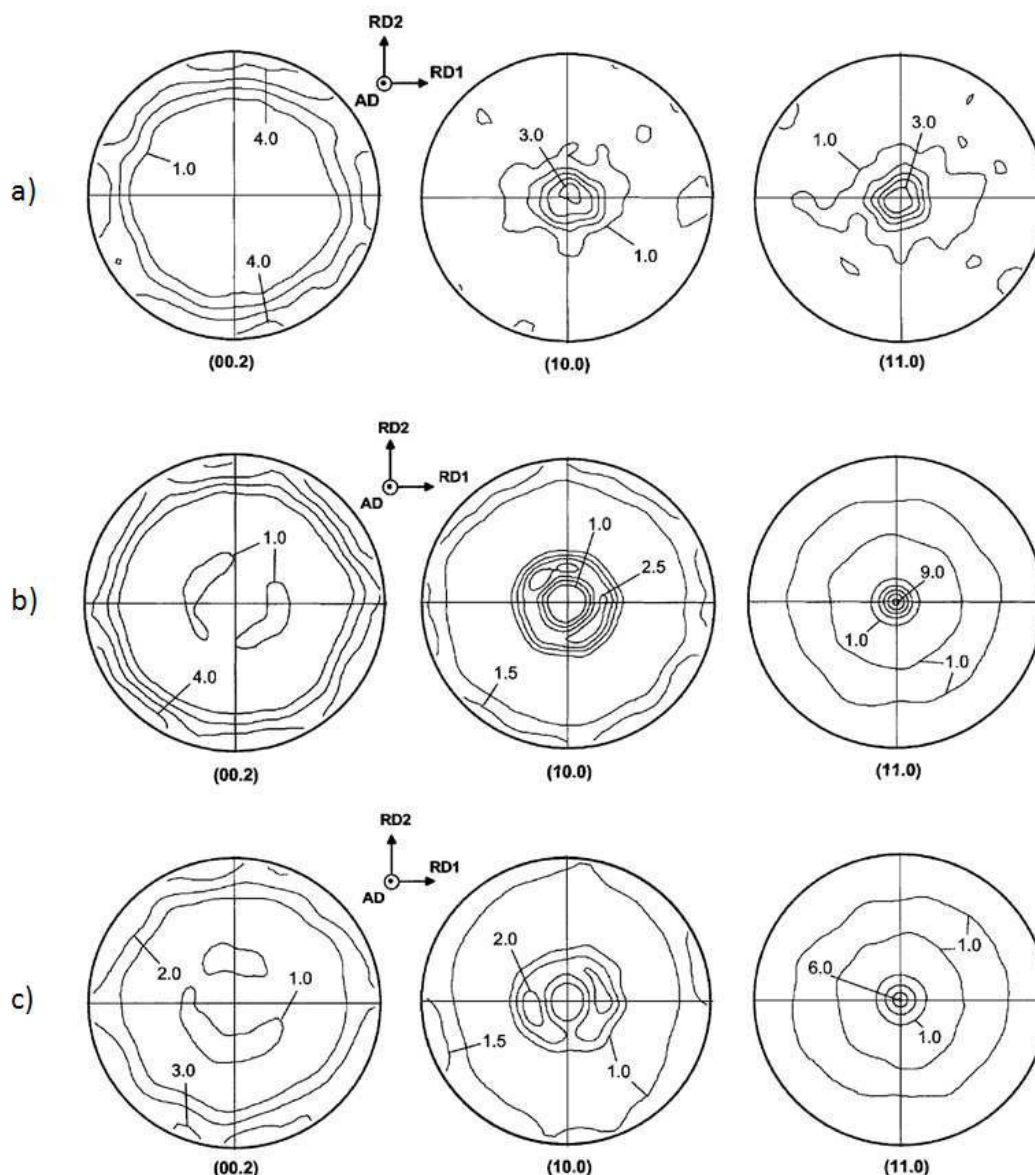
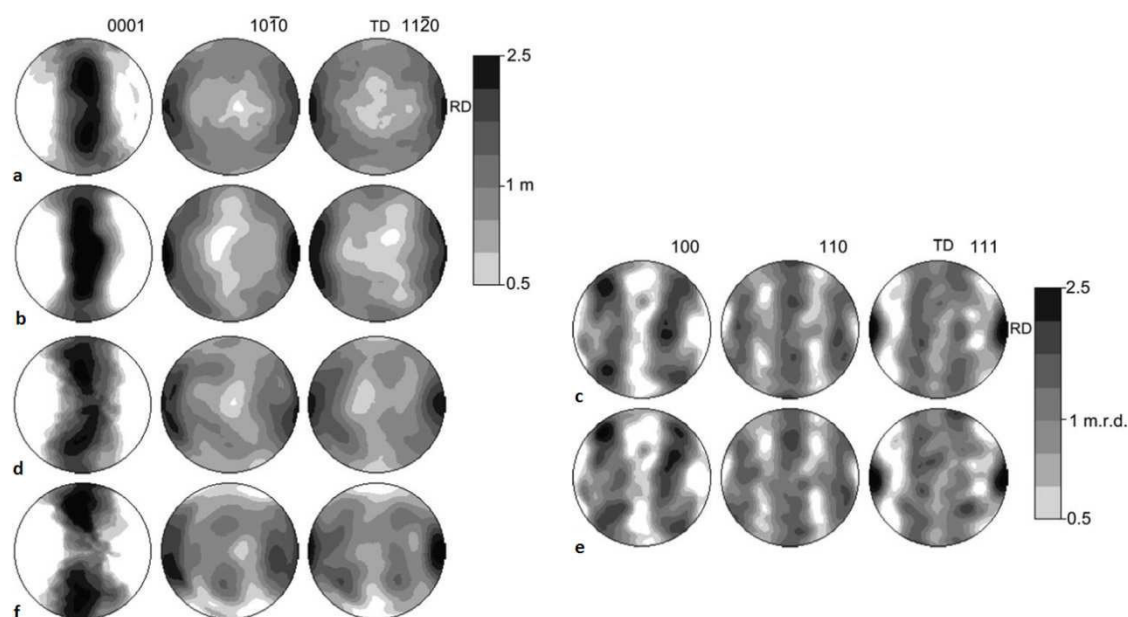
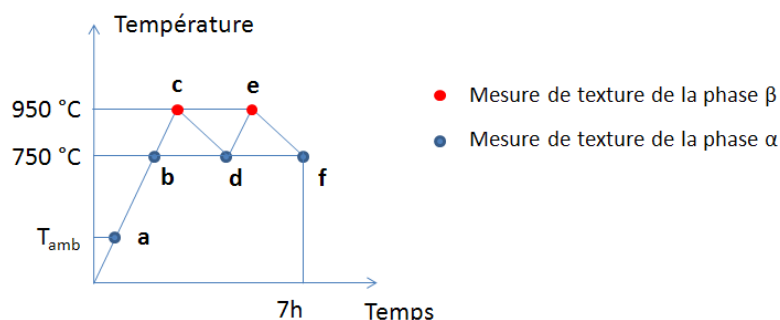


Figure I-22 : Figures de pôles $\{0002\}$, $\{11\bar{2}0\}$ $\{10\bar{1}0\}$, de la phase α : a) à l'état initial ; b) après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$; c) après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ sous une contrainte axiale de 8,2 MPa appliquée au chauffage [59].

Avec les nouvelles techniques beaucoup plus sophistiquées, telles que la diffraction des neutrons [60] ou des rayons X au synchrotron [61], il est possible de mesurer la texture de la phase β .

Wenk *et al.* ont étudié l'influence de plusieurs cycles de transformation de phases sur la texture finale de la phase α par diffractométrie des neutrons [60]. Le schéma de la Figure I-23 représente les cycles thermiques effectués sur un échantillon de Zircaloy-4 extrudé à chaud. Les mesures de textures effectuées à la fois en phase α et en phase β sont indiquées. La montée en température est évaluée à $\sim 20 \text{ }^\circ\text{C.min}^{-1}$ et le refroidissement est rapide. Les résultats de ces mesures sont présentés sur la Figure I-24.



Les figures de pôles sont repérées de a à f, en accord avec la Figure I-23.

La texture finale ressemble à la texture initiale issue de la déformation à chaud. Cependant, les auteurs ont montré utilisant les résultats d'une modélisation basée sur les relations de Burgers avec les orientations observées, que la texture finale de la phase α est différente. La texture observée est donc le résultat de l'addition d'une texture recristallisée et d'une texture issue de l'extrusion.

Romero *et al.* ont étudié l'évolution des textures du Zircaloy-2 à l'aide d'un faisceau X synchrotron couplé à des analyses EBSD [61][62]. Le cycle thermique effectué sur un échantillon de Zircaloy-2 issu d'un laminage à chaud puis β -trempé, est présenté sur la Figure I-25. Les lettres de a à g correspondent aux mesures de textures dont les résultats sont présentés sous la forme de figures de pôles sur la Figure I-26.

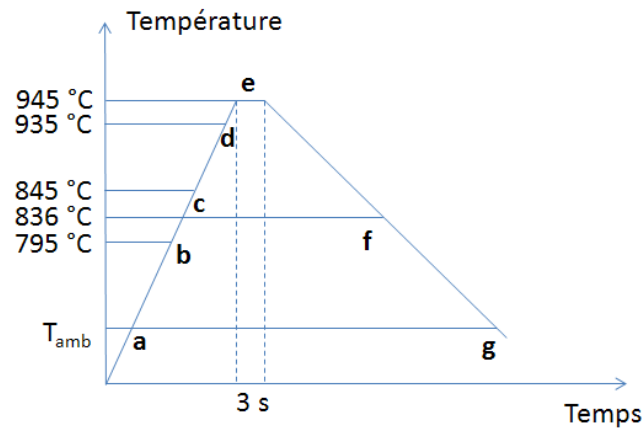


Figure I-25 : Cycle thermique effectué par les auteurs Romero *et al.* [62]

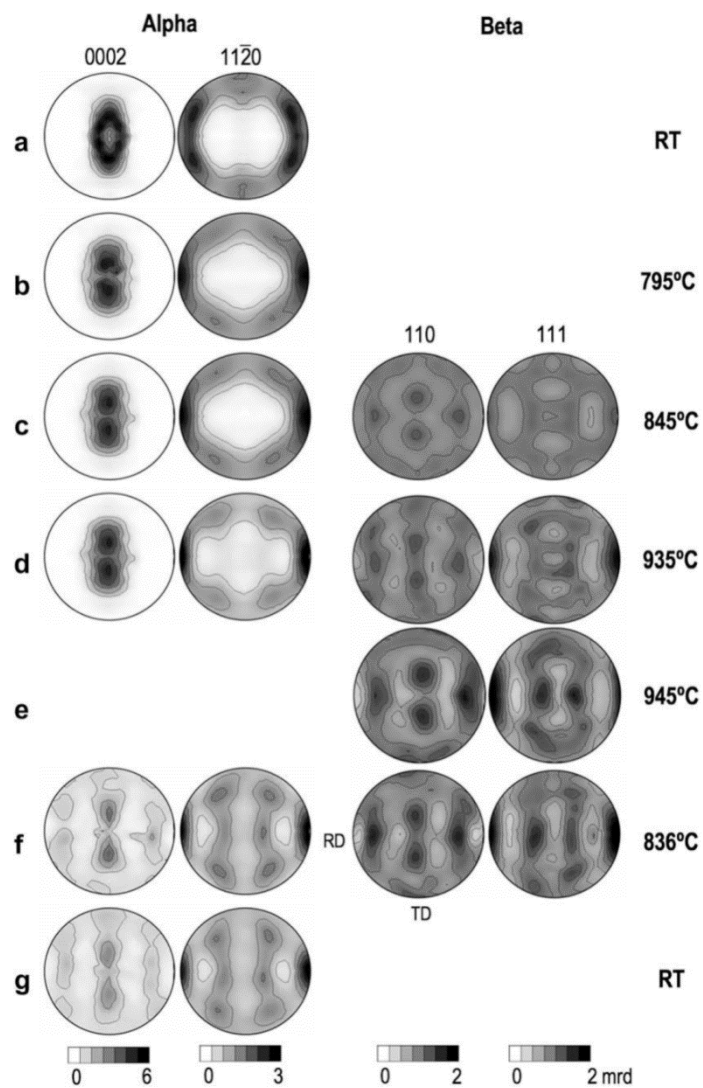


Figure I-26 : Mesures de texture de la phase α ainsi que la phase β le long des cycles thermiques présentés dans la figure précédente [62]

La texture initiale de la phase α est engendrée par le laminage à chaud qui précède le cycle thermique. Son intensité s'atténue considérablement après celui-ci, résultat qui va à l'encontre de celui des auteurs cités précédemment [59]. De 845 °C à 945 °C, la texture de la phase β s'intensifie, ce qui est dû à la croissance des grains β . Des analyses EBSD complémentaires montrent que si le matériau est complètement transformé en phase β , il y a une relaxation de la texture comme l'indiquent les mesures de texture par DRX. En revanche, si le matériau n'est pas complètement transformé, on observe une mémoire de la texture initiale, à savoir, dans cette étude la texture de laminage. Un schéma explicatif de l'effet de mémoire de la texture est présenté sur la Figure I-27.

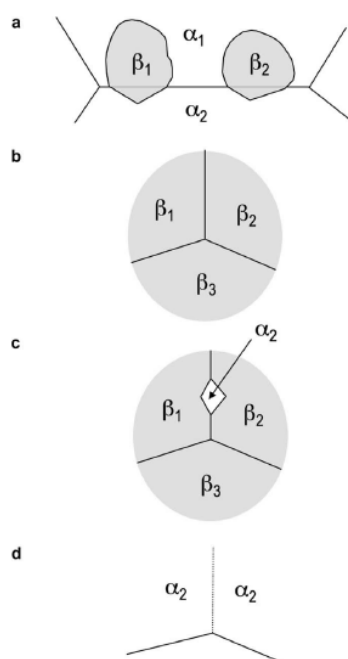


Figure I-27 : Schéma représentatif du mécanisme de mémoire de la texture ; a) deux grains β germent dans un même joint de grain α , en respectant les relations d'orientation de Burgers du grain α_2 ; b) phase β après la transformation ; c) pendant le refroidissement, un grain α qui respecte les relations d'orientation avec les grains β_1 et β_2 est favorisé ; d) après une croissance displacive du grain α , la structure α_2 est restaurée [62]

Les grains α germent de manière à minimiser les changements d'orientation. Cependant la germination d'un grain α est favorisée s'il peut respecter les relations d'orientation de Burgers avec les deux grains β voisins. Ils ont besoin d'une faible énergie d'interface avec au moins un grain β voisin pour croître. L'intensité de la mémoire de la texture est fortement influencée par l'instant du refroidissement : quand la transformation $\alpha \rightarrow \beta$ n'est pas complète, que la phase β n'est pas totalement majoritaire, les mesures montrent une parfaite mémoire de la texture initiale. L'inachèvement de la croissance des grains β favorise la germination des grains α initiaux. Romero *et al.* ont démontré que la sélection des variants est négligeable au chauffage et qu'elle se produit soit lors de la croissance des grains β , soit lors

du refroidissement. Ces conclusions contredisent la thèse de Gey *et al.* qui ont affirmé que la sélection des variants s'effectue au chauffage.

Une étude de la sélection des variants a été menée par Daymond *et al.* sur l'alliage Zr-2,5%Nb [63]. Ils ont étudié l'alliage après une extrusion à chaud avec la diffraction des neutrons. Ils ont pu mesurer la texture *in situ* à 625 °C ainsi qu'à 975 °C. Une première mesure est faite à 625 °C, deux autres à 975 °C, pendant 20 min, au début et à la fin des 80 min de palier, puis la température est abaissée à 625 °C. Ce cycle est répété trois fois (Figure I-28).

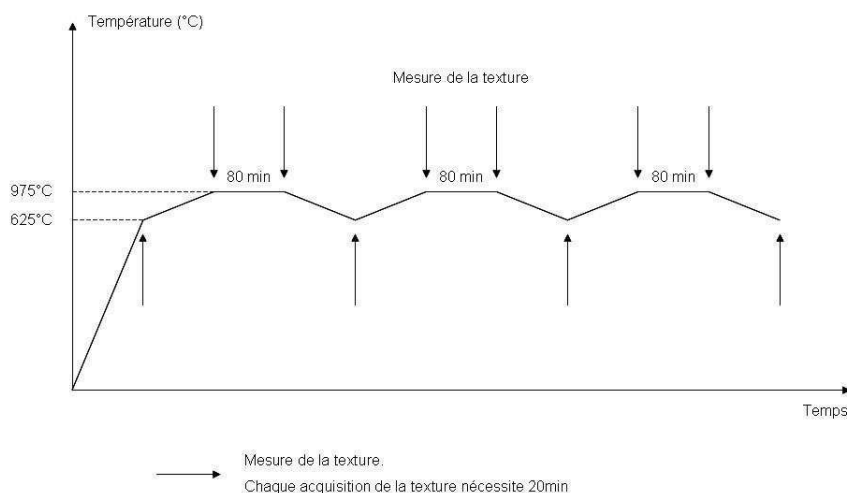


Figure I-28 : Mesures de texture au cours des cycles thermiques effectués sur un échantillon extrudé à chaud par Daymond *et al.* [63]

Dans l'alliage Zr-2,5%Nb, la phase β reste présente à basse température sous forme de fines couches qui s'interposent entre les lamelles α .

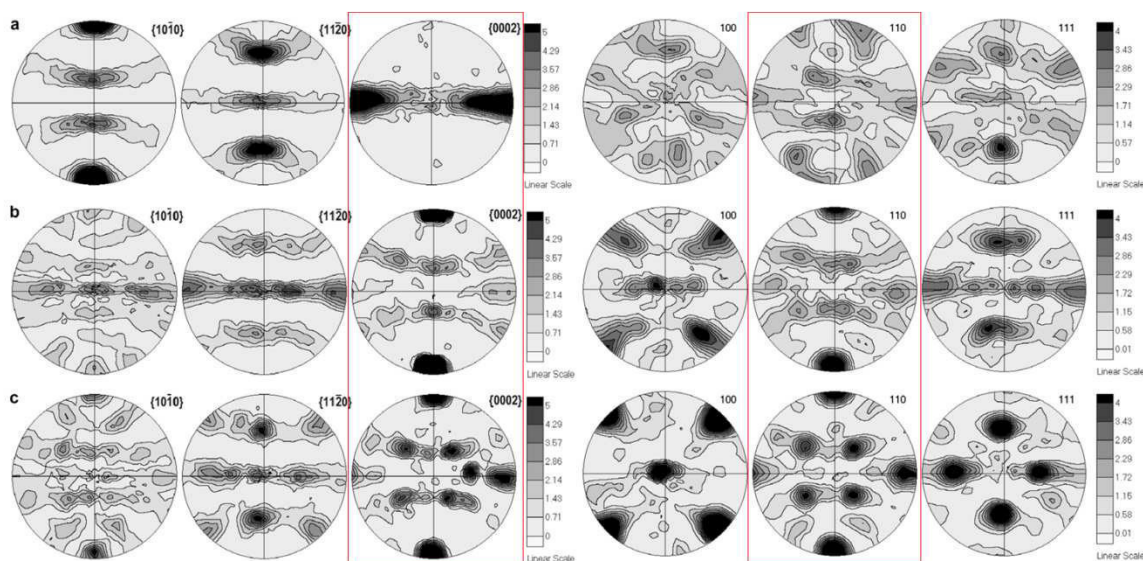


Figure I-29 : Textures des phases α et β à 625 °C, a) état initial ; b) après un 1^{er} cycle ; c) après le 2^e cycle [63]

Les textures des deux phases mesurées à basse température (625 °C) sont présentées sur la Figure I-29, les figures de pôles $(0002)_\alpha$ et $(110)_\beta$ sont encadrées en rouge pour mieux observer les changements de texture au fur à mesure des cycles thermiques. Après le 3^e cycle, résultats non montrés, la texture reste la même mais plus intense, c'est l'effet de mémoire. Les textures de la phase β mesurées à haute température (975 °C) sont présentées sur la Figure I-30.

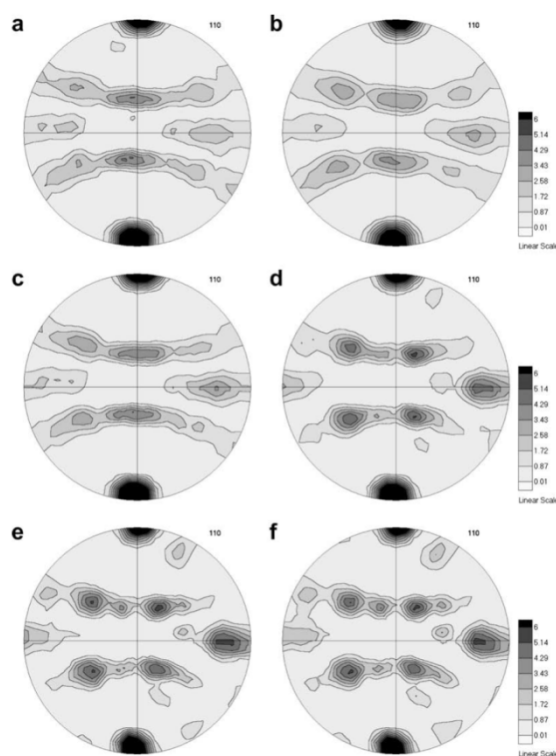


Figure I-30 : Figures de pôles (110) de la phase β à 975 °C : a) au début du 1^{er} plateau ; b) à la fin de 1^{er} plateau ; c) au début du 2^e plateau ; d) à la fin de 2^e plateau ; e) au début du 3^e plateau ; f) à la fin de 3^e plateau [63]

Les auteurs ont observé une sélection des variants autant au chauffage qu'au refroidissement. Pendant la transformation $\alpha \rightarrow \beta$, la texture de la phase β ne se base pas sur les anciens grains β mais sur les grains α en respectant les relations d'orientation de Burgers. D'autre part, pendant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$, la sélection a un effet non sur la localisation des *maxima* de la texture, mais sur l'intensité de celle-ci, qui tend à se renforcer. Il n'y a un effet de mémoire de la texture que si la transformation de α en β n'est pas achevée, ce qui est en accord avec les résultats de Romero *et al.*[62]. Enfin, les auteurs ont remarqué, après le premier cycle, un changement complet de la texture de la phase α . À haute température, on observe une évolution et un renforcement de la texture des pôles $(110)_\beta$ dus à la croissance et à la recristallisation des grains, ce qui conduit à une forte texture de symétrie cubique. Celle-ci se retrouve à basse température, avec les pôles $[0002]_\alpha$ de la phase α . Après les deux autres cycles, la texture ne change pas fondamentalement, elle est simplement renforcée.

Mosbrucker *et al.* ont approfondi récemment cette étude [64] en couplant ces derniers résultats avec ceux obtenus par diffraction des rayons X. Les échantillons ont été portés de la température ambiante à 250 °C, 625 °C, 815 °C puis à 975 °C. Les résultats des DRX sont identiques à ceux de la diffraction des neutrons : après un premier cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$, la texture α change drastiquement, puis après les 2^e et 3^e cycles, un effet de mémoire de la texture est observé. Le changement de texture après le premier cycle peut être expliqué par l'action des contraintes internes dues à l'anisotropie de la phase α , qui influencent la sélection des variants. Au refroidissement, la sélection est moins importante, ce qui doit être dû à l'isotropie de la phase β .

Les nouvelles expériences consistent à mettre sous contrainte les échantillons lors du cycle thermique (tension ou compression) et cela, de trois manières : 1) pendant le chauffage et le refroidissement, 2) pendant le chauffage uniquement, 3) pendant le refroidissement uniquement. La force exercée sur les échantillons est de l'ordre de 50 N (contrainte de 1,8 MPa). Les résultats de l'analyse DRX au cours d'un cycle thermique sous une contrainte de traction sont présentés sur la Figure I-31. En A la contrainte de traction est appliquée à la fois au chauffage et au refroidissement, en B, elle n'est appliquée que lors du chauffage et en C, elle n'est appliquée qu'au refroidissement. Sont présentées les figures de pôles a) $(0002)_\alpha$ et c) $(110)_\beta$ à 625 °C avant la transformation $\alpha \rightarrow \beta$; d) $(110)_\beta$ à 975 °C ; b) $(0002)_\alpha$ et e) $(110)_\beta$ à 625 °C après le cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$. Sur la Figure I-32, les résultats des mesures de textures sont présentés de la même manière que précédemment avec, cette fois, une contrainte de compression. L'effet d'une contrainte de compression ou de traction, lors du refroidissement et au chauffage, sur la texture dans le domaine β est sensiblement le même. Une différence apparaît entre la figure de pôles $(0002)_\alpha$ mesurée après le cycle thermique sous une contrainte de traction appliquée au chauffage (Figure I-31b) et celle après le cycle thermique sous une contrainte de compression appliquée au chauffage (Figure I-32b). En traction, les plans basaux sont à 30° de l'axe d'extrusion alors qu'en compression, ils se situent le long de l'axe d'extrusion. Ceci suggère qu'une traction exercée au chauffage, met le système dans un état de contrainte qui inhibe la sélection des variants qu'imposerait le refroidissement.

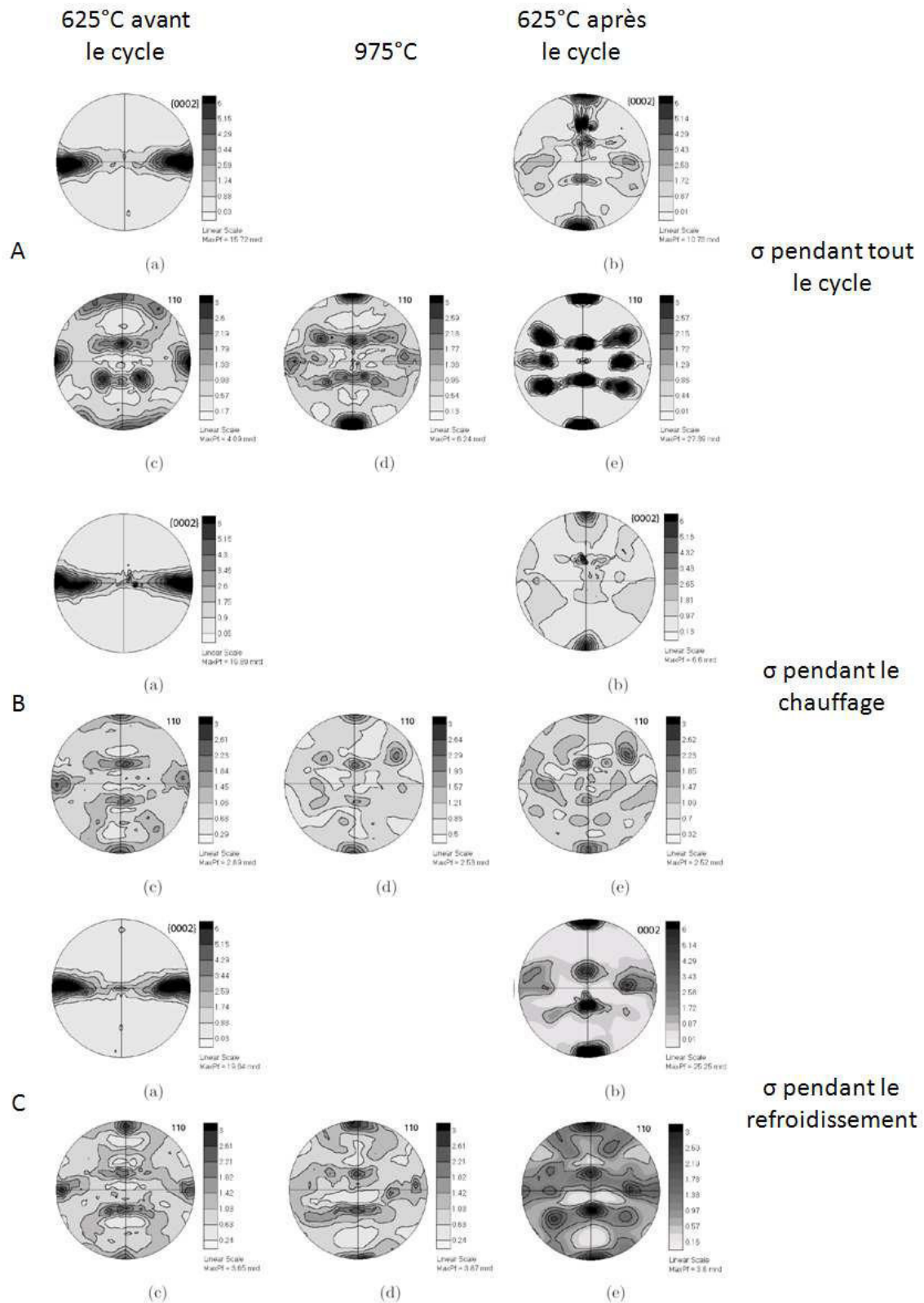


Figure I-31 : Évolution de la texture lors d'un cycle thermique en traction : A) contrainte appliquée pendant tout le cycle ; B) Contrainte appliquée uniquement au chauffage ; C) contrainte appliquée uniquement au refroidissement [64]

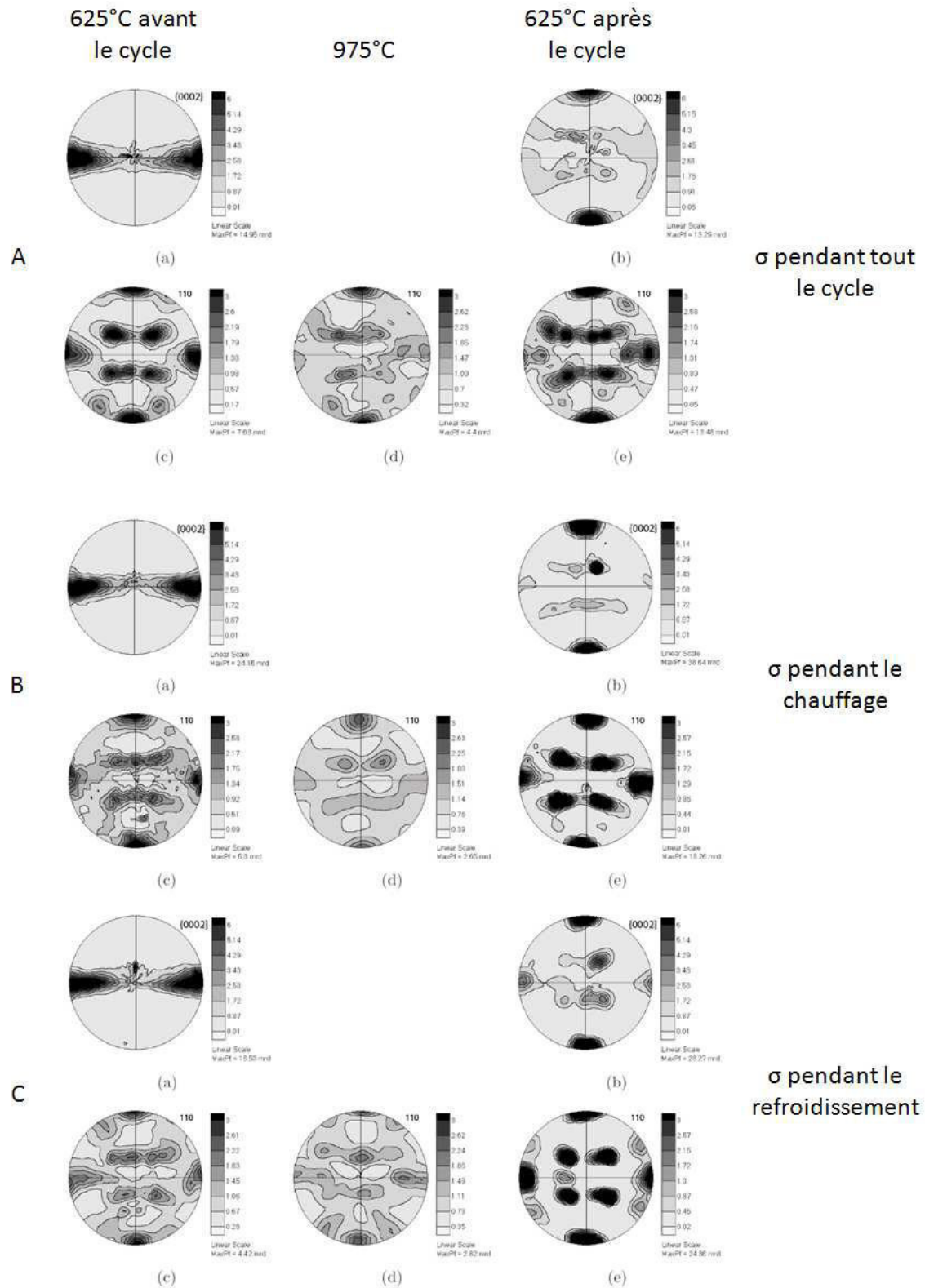


Figure I-32 : Évolution de la texture lors d'un cycle thermique en compression : A) contrainte appliquée pendant tout le cycle ; B) Contrainte appliquée uniquement au chauffage ; C) contrainte appliquée uniquement au refroidissement [64]

Ces phénomènes de sélection des variants ne sont toujours pas bien maîtrisés et compris. Les travaux effectués dans cette thèse ont précisément pour but de mieux comprendre cette sélection des variants.

I.5. Conclusion

Les alliages de zirconium présentent deux phases : la phase α , de structure hexagonale quasi-compacte, est stable à basse température et la phase β , de structure cubique centrée, est stable au-delà de la température de *transus* qui se situe vers 865 °C pour le zirconium pur. Les éléments d'alliage déterminent l'étendue du domaine biphasé ainsi que la vitesse de transformation de phases. Selon la vitesse de trempe, les structures de la phase α peuvent différer. Lors des procédés de fabrication de ces alliages, on est amené à plusieurs reprises à effectuer cette transformation allotropique. L'étude de la microstructure issue de cette transformation est importante afin de mieux maîtriser les étapes de fabrication qui suivent.

La transformation $\beta \rightarrow \alpha$ engendre une microstructure lamellaire dite de Widmanstätten, présentant deux types de morphologie : des lamelles en vannerie et des lamelles en platelets parallèles. Ces lamelles germent au sein d'un ex-grain β de morphologie équiaxe et dont l'orientation détermine celles des grains α engendrés. En effet, un grain β peut donner naissance à 12 variants α différents dont la probabilité de germination dépend de divers paramètres.

La compréhension et la maîtrise de la morphologie aussi bien que de l'orientation de cette microstructure complexe de trempe est indispensable pour l'étude de ses différents mécanismes de déformation.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons un modèle de sélection de variants, basé sur la minimisation de l'énergie du système. Le chapitre suivant fait l'objet de la description des moyens expérimentaux mis en œuvre pour caractériser la microstructure du Zircaloy-4 et de la mise en évidence d'une éventuelle sélection des variants. Les résultats expérimentaux et leur confrontation avec le modèle sont présentés dans le chapitre IV. Enfin, avant de conclure, nous discuterons des effets identifiés à travers l'analyse de ces résultats.

Référence

- [1] C. Lemaignan and A. T. Motta, "Zirconium Alloys in Nuclear Applications," in *Materials Science and Technology*, 1994.
- [2] B. Gaudout, "Modélisation des évolutions microstructurales et étude de la lubrification par film solide lors du filage à chaud d'alliages de zirconium," Thèse ENSMP, 2009.
- [3] R. Tricot, "Zirconium et hafnium," *Techniques de l'Ingénieur*, pp. 1–19, 1994.
- [4] N. D. Milošević and K. D. Maglić, "Thermophysical Properties of Solid Phase Zirconium at High Temperatures," *Int. J. Thermophys.*, vol. 27, no. 4, pp. 1140–1159, Aug. 2006.
- [5] G. L. Miller, *Zirconium*, Second. London, 1957, pp. 1–548.
- [6] D. Charquet, "Propriétés du zirconium et du hafnium," *Techniques de l'Ingénieur*, pp. 1–6, 1985.
- [7] M. Rösner-Kuhn, K. Drewes, H. Franz, and M. G. Froberg, "Enthalpy measurements of the solid high-temperature β -phase of titanium and zirconium by levitation drop calorimetry," *J. Alloys Compd.*, vol. 316, no. 1–2, pp. 175–178, Mar. 2001.
- [8] J. Philibert, A. Vignes, Y. Bréchet, and P. Combrade, *Métallurgie : du minerai au matériau*. Masson, 1998.
- [9] K. Linga Murty and I. Charit, "Texture development and anisotropic deformation of zircalloys," *Prog. Nucl. Energy*, vol. 48, no. 4, pp. 325–359, May 2006.
- [10] E. Tenckhoff, "Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and Zircaloy," *ASTM*, vol. 966, 1988.
- [11] J. C. Couterne and G. Cizeron, "Comportement dilatométrique de monocristaux de zirconium α et application à la mesure des coefficients moyens d'expansion thermique suivant les axes principaux," *J. Nucl. Mater.*, vol. 32, no. 2, pp. 310–321, Sep. 1969.
- [12] J. G. Couterne and G. Cizeron, "Détermination des coefficients principaux d'expansion thermique du Zr α ," *J. Nucl. Mater.*, vol. 20, no. 1, pp. 75–82, Jul. 1966.
- [13] G. M. Benites and A. Fernández Guillermet, "Structural properties of metastable phases in Zr–Nb alloys: II. Systematics of the atomic volumes and interatomic distances," *J. Alloys Compd.*, vol. 302, no. 1–2, pp. 192–198, Apr. 2000.
- [14] P. F. Paradis and W. K. Rhim, "Thermophysical properties of zirconium at high temperature," *J. Mater. Res.*, vol. 14, no. 09, pp. 3713–3719, 1999.

- [15] D. Charquet, "Traitements thermiques du zirconium et du hafnium," *Techniques de l'Ingénieur*, pp. 1–7, 1985.
- [16] S. Banerjee, *Phase transformation*, vol. 1. 1st edition, Elsevier Science, 2007.
- [17] P. Ehrenfest, "Phase changes in the ordinary and extended sense classified according to the corresponding singularities of the thermodynamic potential," *Proc. Acad. Sci. Amsterdam*, vol. 36, pp. 153–157, 1933.
- [18] M. J. Buerger, *Phase Transformation in solids*. New York: Wiley, 1951, p. 183.
- [19] S. Morito, X. Huang, T. Furuhashi, T. Maki, and N. Hansen, "The morphology and crystallography of lath martensite in alloy steels," *Acta Mater.*, vol. 54, no. 19, pp. 5323–5331, Nov. 2006.
- [20] D. J. Rowenhorst, A. Gupta, C. R. Feng, and G. Spanos, "3D Crystallographic and morphological analysis of coarse martensite: Combining EBSD and serial sectioning," *Scr. Mater.*, vol. 55, no. 1, pp. 11–16, Jul. 2006.
- [21] S. Morito, Y. Edamatsu, K. Ichinotani, T. Ohba, T. Hayashi, Y. Adachi, T. Furuhashi, G. Miyamoto, and N. Takayama, "Quantitative analysis of three-dimensional morphology of martensite packets and blocks in iron-carbon-manganese steels," *J. Alloys Compd.*, pp. 2–7, Feb. 2012.
- [22] S. Banerjee, G. K. Dey, D. Srivastava, and S. Ranganathan, "Plate-Shaped Transformation Products in Zirconium-Base Alloys," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 28, no. November, pp. 2201–2216, 1997.
- [23] R. . Holt, "The beta to alpha phase transformation in zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 35, no. 3, pp. 322–334, Jun. 1970.
- [24] G. Ökvist and K. Källström, "The effect of zirconium carbide on the $\beta \rightarrow \alpha$ transformation structure in zircaloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 35, no. 3, pp. 316–321, Jun. 1970.
- [25] J. Crépin, T. Bretheau, D. Caldemaison, A. Barbu, and G. Jazkierowicz, "Microstructural study of β treated grade 702 zirconium . Scanning electron microscopy and transmission electron microscopy , complementarity of two observational scales," *J. Mater. Sci.*, vol. 32, pp. 4841–4846, 1997.
- [26] J. Crépin, T. Bretheau, and D. Caldemaison, "Plastic deformation mechanisms of β treated zirconium," *Acta Metall. Mater.*, vol. 43, no. 10, pp. 3709–3719, Oct. 1995.
- [27] N. Vanderesse, E. Maire, M. Darrieulat, F. Montheillet, M. Moreaud, and D. Jeulin, "Three-dimensional microtomographic study of Widmanstätten microstructures in an alpha/beta titanium alloy," *Scr. Mater.*, vol. 58, no. 6, pp. 512–515, Mar. 2008.
- [28] H. Sharma, S. M. C. van Bohemen, R. H. Petrov, and J. Sietsma, "Three-dimensional analysis of microstructures in titanium," *Acta Mater.*, vol. 58, no. 7, pp. 2399–2407, Apr. 2010.

- [29] L. Kaufman, "The lattice stability of metals—I. Titanium and zirconium," *Acta Metall.*, vol. 7, no. 8, pp. 575–587, Aug. 1959.
- [30] W. G. Burgers, "On the process of transition of the cubic-body-centered modification into the hexagonal-close-packed modification of zirconium," *Phys. I*, 1933.
- [31] S. C. Wang, M. Aindow, and M. J. Starink, "Effect of self-accommodation on α/α boundary populations in pure titanium," *Acta Mater.*, vol. 51, no. 9, pp. 2485–2503, May 2003.
- [32] O. T. Woo and K. Tangri, "Transformation characteristics of rapidly heated and quenched zircaloy-4-oxygen alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 79, no. 1, pp. 83–94, Jan. 1979.
- [33] D. Charquet and E. Alheritière, "Zirconium in the nuclear industry: seventh international symposium, ASTM STP 939," 1987, pp. 284–291.
- [34] A. R. Massih and L. O. Jernkvist, "Phase ordering under quenching: a case of Zr-alloy," *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 65, no. 6, pp. 1193–1198, Jun. 2004.
- [35] H. S. Hong, S. J. Kim, and K. S. Lee, "Effect of oxygen content on the beta-quenched microstructure of modified Zircaloy-4," *J. Nucl. Mater.*, vol. 265, no. 1–2, pp. 108–111, Feb. 1999.
- [36] D. Bhattacharyya, G. . Viswanathan, R. Denkenberger, D. Furrer, and H. L. Fraser, "The role of crystallographic and geometrical relationships between α and β phases in an α/β titanium alloy," *Acta Mater.*, vol. 51, no. 16, pp. 4679–4691, Sep. 2003.
- [37] N. Stanford and P. S. Bate, "Crystallographic variant selection in Ti–6Al–4V," *Acta Mater.*, vol. 52, no. 17, pp. 5215–5224, Oct. 2004.
- [38] D. Bhattacharyya, G. B. Viswanathan, and H. L. Fraser, "Crystallographic and morphological relationships between β phase and the Widmanstätten and allotriomorphic α phase at special β grain boundaries in an α/β titanium alloy," *Acta Mater.*, vol. 55, no. 20, pp. 6765–6778, Dec. 2007.
- [39] G. C. Obasi, S. Biroscas, J. Quinta da Fonseca, and M. Preuss, "Effect of β grain growth on variant selection and texture memory effect during $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ phase transformation in Ti–6 Al–4 V," *Acta Mater.*, vol. 60, no. 3, pp. 1048–1058, Feb. 2012.
- [40] A. R. Massih, T. Andersson, P. Witt, M. Dahlbäck, and M. Limbäck, "Effect of quenching rate on the β -to- α phase transformation structure in zirconium alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 322, no. 2–3, pp. 138–151, Nov. 2003.
- [41] S. Morito, H. Tanaka, R. Konishi, T. Furuhashi, and T. Maki, "The morphology and crystallography of lath martensite in Fe–C alloys," *Acta Mater.*, vol. 51, no. 6, pp. 1789–1799, Apr. 2003.
- [42] T. Furuhashi and T. Maki, "Variant selection in heterogeneous nucleation on defects in diffusional phase transformation and precipitation," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 312, no. 1–2, pp. 145–154, Aug. 2001.

- [43] A. J. Schwartz, M. Kumar, B. L. Adams, D. P. Field, "Electron Backscatter Diffraction in Materials Science," pp. 317–327, Second edition, 2009.
- [44] S. R. MacEwen, J. Faber, and A. P. L. Turner, "The influence of texture on the interpretation of diffraction data to determine residual stress," *Scr. Metall.*, vol. 18, no. 6, pp. 629–633, Jun. 1984.
- [45] S. R. MacEwen, C. Tome, and J. Faber, "Residual stresses in annealed zircaloy," *Acta Metall.*, vol. 37, no. 3, pp. 979–989, Mar. 1989.
- [46] R. Logé, "Sensitivity of α -Zr₄ high-temperature deformation textures to the β -quenched precipitate structure and to recrystallization: application to hot extrusion," *Acta Mater.*, vol. 48, no. 15, pp. 3917–3930, Sep. 2000.
- [47] B. A. Cheadle, C. E. Ells, and W. Evans, "The development of texture in zirconium alloy tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 23, no. 2, pp. 199–208, Aug. 1967.
- [48] B. A. Cheadle and C. E. Ells, "The effect of rolling temperature on the texture developed in rolled zirconium rich alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 24, no. 2, pp. 240–244, Nov. 1967.
- [49] A. R. Massih, M. Dahlbäck, M. Limbäck, T. Andersson, and B. Lehtinen, "Effect of beta-to-alpha phase transition rate on corrosion behaviour of Zircaloy," *Corros. Sci.*, vol. 48, no. 5, pp. 1154–1181, May 2006.
- [50] T. Seshacharyulu and B. Dutta, "Influence of prior deformation rate on the mechanism of $\beta \rightarrow \alpha + \beta$ transformation in Ti–6Al–4V," *Scr. Mater.*, vol. 46, no. 9, pp. 673–678, May 2002.
- [51] A. Akhtar, "The Allotropic Transformation bcc-hcp in Zirconium," *Metall. Trans. A*, vol. 7A, pp. 1735–1741, 1976.
- [52] N. Gey, M. Humbert, and H. Moustahfid, "Study of the $\alpha \rightarrow \beta$ phase transformation of a Ti–6Al–4V sheet by means of texture change," *Scr. Mater.*, vol. 42, no. 6, pp. 525–530, Feb. 2000.
- [53] C. Cayron, "Importance of the $\alpha \rightarrow \beta$ transformation in the variant selection mechanisms of thermomechanically processed titanium alloys," *Scr. Mater.*, vol. 59, no. 5, pp. 570–573, Sep. 2008.
- [54] C. Cayron, B. Artaud, and L. Briottet, "Reconstruction of parent grains from EBSD data," *Mater. Charact.*, vol. 57, no. 4–5, pp. 386–401, Dec. 2006.
- [55] N. Gey and M. Humbert, "Specific analysis of EBSD data to study the texture inheritance due to the $\beta \rightarrow \alpha$ phase transformation," *J. Mater. Sci.*, vol. 38, pp. 1289–1294, 2003.
- [56] M. Humbert, H. Moustahfid, F. Wagner, and M. J. Philippe, "Evaluation of the high temperature texture of the β phase of a TA6V sample from the individual orientations of grains of the low temperature α phase," *Scr. Metall. Mater.*, vol. 30, no. 3, pp. 377–382, Feb. 1994.

- [57] L. Germain, N. Gey, R. Mercier, P. Blaineau, and M. Humbert, "An advanced approach to reconstructing parent orientation maps in the case of approximate orientation relations: Application to steels," *Acta Mater.*, vol. 60, no. 11, pp. 4551–4562, Jun. 2012.
- [58] M. Humbert, P. Blaineau, L. Germain, and N. Gey, "Refinement of orientation relations occurring in phase transformation based on considering only the orientations of the variants," *Scr. Mater.*, vol. 64, no. 2, pp. 114–117, Jan. 2011.
- [59] N. Gey, E. Gautier, M. Humbert, A. Cerqueira, J. L. Bechade, and P. Archambault, "Study of the α/β phase transformation of Zy-4 in presence of applied stresses at heating: analysis of the inherited microstructures and textures," *J. Nucl. Mater.*, vol. 302, no. 2–3, pp. 175–184, Apr. 2002.
- [60] H.-R. Wenk, I. Lonardelli, and D. Williams, "Texture changes in the hcp \rightarrow bcc \rightarrow hcp transformation of zirconium studied in situ by neutron diffraction," *Acta Mater.*, vol. 52, no. 7, pp. 1899–1907, Apr. 2004.
- [61] J. Romero, M. Preuss, and J. Quinta da Fonseca, "Capturing the texture changes in a zirconium alloy during the allotropic phase transformation," *Scr. Mater.*, vol. 61, no. 4, pp. 399–402, Aug. 2009.
- [62] J. Romero, M. Preuss, and J. Quinta da Fonseca, "Texture memory and variant selection during phase transformation of a zirconium alloy," *Acta Mater.*, vol. 57, no. 18, pp. 5501–5511, Oct. 2009.
- [63] M. R. Daymond, R. a. Holt, S. Cai, P. Mosbrucker, and S. C. Vogel, "Texture inheritance and variant selection through an hcp–bcc–hcp phase transformation," *Acta Mater.*, vol. 58, no. 11, pp. 4053–4066, Jun. 2010.
- [64] P. L. Mosbrucker, "Texture Evolution and Variant Selection in Zr-2.5Nb During the α - β Phase Transformation," Queen's University, 2010.

CHAPITRE 2

Chapitre II : Modèle de sélection de variants

Des études de texture et les analyses cristallographiques des microstructures ont permis d'observer certains effets de sélection de variants. Il est important de comprendre ce phénomène de sélection dans le but d'améliorer en retour la maîtrise de la microstructure lors des étapes de fabrications des produits en alliage de zirconium qui servent à la réalisation des crayons-combustibles. Les comparaisons entre les textures à haute température, dans le domaine monophasé β et à l'ambiante après la transformation de phase montrent une influence de l'orientation initiale des grains β sur l'activation de maclages [1] et d'une certaine sélection de variants. Cette dernière peut être influencée par divers paramètres tels que les éléments d'alliages, les joints de grains de la phase parente [2], les traitements thermomécaniques antérieurs ou les contraintes induites par la transformation de phases. Certains auteurs ont déjà construit des modèles visant à prédire la sélection des orientations ou la texture issue d'une transformation de phases ; ils sont décrits dans la section bibliographique qui suit.

II.1. Bibliographie

Diverses approches de modélisation de la sélection de variants se trouvent dans la bibliographie à propos des transformations de phases martensitiques, bainitiques ou de Widmanstätten entre différents réseaux cristallins. Dans cette section, nous présentons d'abord un modèle récent de la sélection de variants lors de la transformation bainitique des aciers, puis une synthèse des démarches suivies concernant la transformation du réseau cubique centré en réseau hexagonal, enfin des conclusions sur ce que nous en retenons pour la présente thèse.

II.1.1. Transformation bainitique

Lubin *et al.* [3] proposent un modèle de sélection des variants dans un acier bainitique, composé de deux parties ; il peut être utile de s'inspirer de la transformation bainitique pour la transformation de Widmanstätten car les deux sont à la fois partiellement displacives, partiellement diffusives.

La *première partie* consiste à déterminer les déformations engendrées par la transformation de phases. Pour cela les auteurs utilisent un modèle préexistant basé sur la cristallographie de la martensite (Phenomenological Theory of Martensite Crystallography PTMC). Cette théorie considère que la transformation d'un réseau cristallin à l'autre est la résultante de trois opérations : la déformation de Bain, une rotation de corps rigide et une déformation à réseau invariant (cisaillement ou maclage). Kelly [4] ajoute à ce modèle un second cisaillement à réseau invariant. C'est ce dernier modèle PTMC à deux cisaillements que Lubin *et al.* appliquent dans leurs travaux. Les données sont les plans de cisaillement 1 et 2 ainsi que l'amplitude du cisaillement 2. Les auteurs observent que le choix du plan de cisaillement 1

influence fortement l'amplitude et la direction de la déformation macroscopique ; le choix du plan de cisaillement 2 avec une amplitude du cisaillement particulière, permet d'obtenir un même plan d'habitat et une même relation d'orientation quel que soit le système de cisaillement 1 choisi ; enfin, la relation d'orientation entre l'austénite et la phase fille dépend uniquement du choix de ce dernier plan de cisaillement 2.

Dans la *seconde partie*, les auteurs modélisent l'auto-accommodation en s'appuyant sur la résolution d'un problème d'Eshelby avec trois inclusions : l'austénite mère, le variant de référence de Bowles et MacKenzie et un deuxième variant. Ce modèle est basé sur celui de Lambert et Gourgues [5][6], toutefois les auteurs apportent des améliorations, comme par exemple l'introduction des lois de comportement des phases constitutives. Ils étudient la sensibilité du modèle par rapport à ses paramètres, notamment ceux du modèle micromécanique tels que la vitesse de déformation ou le facteur de forme, ces derniers sont issus des données expérimentales. Cette approche évalue l'énergie élastique stockée et la contrainte dans l'austénite, ce qui permet de classer les couples de variants en fonction du degré d'accommodation.

Les auteurs concluent sur les points suivants :

- les microstructures bainitiques formées à haute température présentent des groupements de variants faiblement désorientés entre eux et proches de la relation de macle ($60,3^\circ \langle 433 \rangle_\alpha$), ils ont une accommodation faible qui est fortement dépendante du plan de cisaillement 1 considéré.
- les microstructures bainitiques formées à basse température et la martensite en lattes sont principalement constituées de groupes de plus de 3 variants formant des paquets. Ces paquets présentent une forte accommodation quel que soit le plan de cisaillement 1 considéré. Le critère d'auto-accommodation permet d'expliquer ces microstructures.

II.1.2. Transformation de Widmanstätten cubique centré vers hexagonal

D'autres auteurs s'intéressent à la sélection des variants lors de la transformation de la structure cubique centrée vers la structure hexagonale. Encore aujourd'hui, cette sélection de variants n'est pas très bien comprise, comme mentionné dans le chapitre précédent. À travers différentes études de texture et d'observations cristallographiques, divers modèles sont proposés :

— Humbert *et al.* [7] ont élaboré un modèle de sélection des variants dans les aciers basé sur l'anisotropie élastique de la phase parente. Ce modèle est ensuite appliqué aux alliages de Zr [8]. L'anisotropie élastique de la phase β engendre une densité d'énergie de déformation élastique qui dépend de la sélection des variants lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$. L'embryon est considéré comme un ellipsoïde hétérogène qui germe dans un milieu infini homogène équivalent avec le comportement élastique du polycristal β texturé caractérisé par le tenseur d'élasticité C . Cette densité d'énergie s'écrit :

$$w = \frac{1}{2} \boldsymbol{\epsilon}^B : C : \boldsymbol{\epsilon}^B \quad (\text{II-1})$$

où ϵ^B est le tenseur de déformation de Bain. La sélection de variants est induite via l'énergie de déformation élastique, par la probabilité de germination de chaque variant qui dépend de son énergie. En pratique, les auteurs considèrent une énergie seuil et des probabilités de germinations des variants équiprobables, pour ceux dont l'énergie est inférieure au seuil, et nulles pour les autres. Pour l'application, à partir d'une texture de la phase α de départ, la texture de la phase β après chauffage est reconstituée en respectant les relations d'orientation de Burgers. Ensuite, la nouvelle texture de la phase α après refroidissement est calculée sous l'influence de la sélection des variants α induite par l'anisotropie élastique du matériau β texturé. Ce modèle ne prend pas en compte ni l'aspect morphologique des grains, ni l'influence des joints de grains.

— Basés sur des observations texturales de la microstructure trempée d'un alliage de Ti, Karthikeyan *et al.* [9] implémentent un modèle de sélection des variants sous l'influence de la vitesse de refroidissement et de la germination aux joints de grains. À partir d'une texture β issue du laminage à froid avec $\{111\}$ // plan de laminage et $\langle 110 \rangle$ // direction de laminage, la reconstruction de la texture α s'effectue avec le respect des relations d'orientation de Burgers au refroidissement. À cause de la symétrie de l'échantillon, deux orientations, dénotées β_1 et β_2 seulement sont considérées, chacune d'elles peut engendrer 12 variants α , mais parmi ces 12 variants, trois sont communs aux deux orientations β_1 et β_2 . Une probabilité est attribuée à chaque variant α ; elle dépend de la vitesse de refroidissement.

Quand le refroidissement est relativement lent, la phase α se forme le long des joints de grains et les 3 variants α communs aux grains β_1 et β_2 sont très privilégiés. À plus forte vitesse de refroidissement, la phase α germe à l'intérieur des grains, il n'y a pas de sélection des variants aux joints de grains.

— Shi et Wang [10] mettent en place un modèle par champ de phases en 3D qui prend en compte à la fois l'aspect thermodynamique de la transformation de phases et l'influence des contraintes internes et externes. Le modèle incorpore les relations d'orientation de Burgers entre les phases mère et fille, l'anisotropie élastique due au réseau hexagonal de la phase α et la cohérence entre les réseaux cristallins des deux phases, ce qui permet le calcul des contraintes internes auxquelles s'ajoutent les contraintes externes (ou pré-déformations) implémentées dans le programme. Ce modèle ne permet pas de prédire la sélection des variants dans tous les cas de figure, il n'est valide, selon les auteurs, que dans le cas où les contraintes internes sont bien inférieures aux contraintes externes.

Pour une vitesse de refroidissement donnée, les contraintes internes tendent à sélectionner les variants qui favorisent l'auto-accommodation, ce qui entraîne le développement d'une texture appelée « microtexture de transformation » qui est sensible à l'axe selon laquelle est appliquée la contrainte externe. Les contraintes externes, quant à elles, vont empêcher ce développement. Les variants sélectionnés pour minimiser l'énergie sont différents selon la nature de la contrainte externe (compression ou tension) et selon la cohérence des réseaux cristallins de la phase matricielle et de la phase qui se développe.

II.1.3. Conclusions pour notre travail

De toutes les démarches présentées, nous retenons l'importance de la déformation de Bain et de l'énergie qui lui est associée pour l'éventuelle sélection de variants. Dans ce chapitre, est

proposé un modèle de sélection de variants α basé sur la minimisation de l'énergie du système. Le système initial considéré est soit un monocristal β isolé, soit un grain β plongé dans une matrice β isotrope infinie, soit quatre grains β voisins. La cinétique de la transformation est fixée par la thermochimie de la transformation allotropique. En conséquence, l'influence de l'éventuelle sélection de variants sur cette cinétique est négligée. En revanche, la sélection des variants est pilotée exclusivement par l'énergie associée à la déformation de Bain. Dans le bilan énergétique, cette dernière est faible comparée aux autres énergies mises en jeu lors de la transformation de phases. L'énergie mécanique contient une partie sphérique qui correspond au changement de volume, identique pour tous les variants, et une partie déviatorique ; c'est seulement cette dernière qui peut influencer la sélection des variants α . Un grain β peut engendrer 12 orientations différentes de α . Barbéris *et al.* [11] supposent que la germination des grains α conduit à la minimisation de l'énergie élastique du système. Ces auteurs montrent que 6 variants suffisent à obtenir le minimum absolu. Dans ce chapitre, cette approche est étendue avec différentes hypothèses sous forme analytique et est aussi intégrée dans un schéma de type automate cellulaire.

II.2. Principe de la sélection de variants

L'étude bibliographique a déjà évoqué les différents paramètres pris en compte dans le but de prédire la sélection des variants lors de la transformation de phases. Il est important de faire ressortir quelques éléments pouvant influencer cette sélection :

- l'état de texture du matériau avant ladite transformation de phase. Dans notre cas, l'état de départ est constitué de la phase β considérée comme isotrope, c'est-à-dire sans texture macroscopique ;
- la présence ou non de contrainte externe lors du refroidissement ;
- l'interaction des contraintes internes impliquées pendant la transformation de phases entre elles ;
- la vitesse de la trempe ;
- la taille des grains β initiaux ;
- les proportions des caractères morphologiques vannerie et platelets parallèles, ce qui implique l'étude des sites de germination.

Notre modèle, dans sa première approche, ne traite que de la partie énergétique de la transformation de Bain.

Dans un premier temps, sont posés les hypothèses et principes du modèle de minimisation d'énergie du système. Dans un deuxième temps, quelques simplifications sont effectuées, telle que l'introduction des pseudo-variants, pour les calculs analytiques qui sont détaillés dans un troisième temps. Dans la section suivante, un outil pour les calculs numériques est mis en place afin de considérer tous les variants α avec les mêmes bases de calcul. Enfin, les résultats des calculs analytiques et numériques sont présentés et comparés entre eux avant la conclusion du chapitre.

II.2.1. Hypothèse de la minimisation de l'énergie élastique du système

L'hypothèse et la méthode des calculs analytiques de notre modèle sont détaillées dans cette section, des informations complémentaires sont dans l'article avec la référence [12].

Lors du refroidissement, il est bien connu que la transformation allotropique $\beta \rightarrow \alpha$ s'effectue en suivant les relations de Burgers $\{110\}_\beta // \{0001\}_\alpha$ et $\langle 111 \rangle_\beta // \langle 11\bar{2}0 \rangle_\alpha$ (Figure II-1) [13].

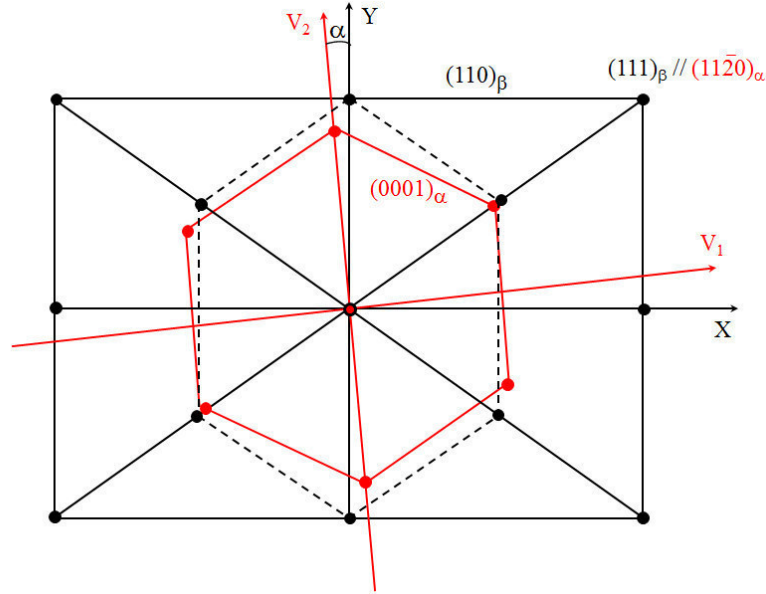


Figure II-1 : Relations cristallographiques du réseau cristallin entre les phases β et α , Z étant la normale au plan du schéma, V_1 et V_2 , Z sont les vecteurs propres de la déformation de Bain

La déformation associée à la transformation de phases, appelée distorsion de Bain, s'écrit dans le repère du variant sous la forme suivante :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^B = \begin{bmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_2 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3 \end{bmatrix} \approx \begin{bmatrix} 0,1022 & 0 & 0 \\ 0 & -0,1000 & 0 \\ 0 & 0 & 0,0184 \end{bmatrix} \quad (\text{II-2})$$

où :

ε_1 , ε_2 , ε_3 sont les valeurs propres du tenseur de Bain associées, respectivement aux axes V_1 , V_2 et Z de la Figure II-1.

Exprimés dans le repère du grain β parent choisi comme repère commun à tous les variants, les tenseurs de déformation des 12 variants sont différents.

À cette déformation de transformation de phases intrinsèque au matériau, peut être ajoutée une déformation externe, $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}$. Elle peut être associée à une contrainte thermoélastique liée à une trempe ou à une contrainte appliquée lors de la trempe.

Si l'on considère un ensemble de N variants ($N \leq 12$) issus de la transformation de phases $\beta \rightarrow \alpha$, au sein d'une éprouvette constituée d'un unique ex-grain β , appelé « grain parent », la

déformation affectant chaque variant est $\boldsymbol{\varepsilon}^k + \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}$, et la déformation moyenne dans l'ex-grain β parent s'exprime comme suit :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \sum_{k=1}^N f_k (\boldsymbol{\varepsilon}^k + \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}) \quad (\text{II-3})$$

où

$\boldsymbol{\varepsilon}$ = tenseur de la déformation moyenne, au sein de l'ex-grain β parent, sans dimension,

k = indice des variants,

N = nombre de variants présents,

f_k = fraction volumique du variant k , sans dimension,

$\boldsymbol{\varepsilon}^k$ = tenseur de distorsion de Bain du variant k , sans dimension, et

$\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}$ = tenseur de déformation externe.

Barb ris *et al.* postulent que la transformation allotropique $\beta \rightarrow \alpha$ s'effectue instantan ment au sein du grain β et que l'arrangement des variants est tel qu'il tend   minimiser la d formation moyenne exprim e dans l' quation (II-3) [11], pr cis ment la carr  de la norme canonique $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$. Les dilatations thermiques sont n glig es pendant le refroidissement. Les param tres de sortie de cette minimisation sont la combinaison de variants s lectionn s et les fractions volumiques f_k correspondantes, avec $\sum_{k=1}^N f_k = 1$, ce qui signifie que la transformation est compl te. Une autre fa on d'interpr ter cette hypoth se consiste   consid rer l' nergie m canique associ e   la d formation moyenne $\boldsymbol{\varepsilon}$. Celle-ci peut  tre formul e de la fa on suivante :

$$w^* = \frac{1}{2} \left(\kappa^* - \frac{2\mu^*}{3} \right) (\text{tr } \boldsymbol{\varepsilon})^2 + \mu^* \|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2 \quad (\text{II-4})$$

  

w^* =  nergie stock e par unit  de volume, J/m³, *i.e.* Pa,

κ^* = module de compressibilit , Pa,

μ^* = module de cisaillement effectif prenant en compte les relaxations viscoplastiques du mat riau, Pa,

tr = trace du tenseur (somme des termes diagonaux du tenseur), et

$\boldsymbol{\varepsilon}$ = tenseur de d formation moyenne   l'int rieur du grain β .

La trace $\text{tr } \boldsymbol{\varepsilon} = \text{tr } \boldsymbol{\varepsilon}^k$ correspond au changement de volume d    la transformation de phases et est la m me quel que soit le variant consid r . Le premier terme de l' quation (II-4) est constant, ce qui nous am ne   conclure que minimiser l' nergie m canique w^* est  quivalent   minimiser $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$; peu importe la valeur de μ^* . Le calcul de s lection des variants pr sent  dans cette  tude consiste    valuer la d formation moyenne du syst me consid r  et  

minimiser le carré de sa norme $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$. Il faut noter que la pertinence du modèle réside dans le choix du système à l'intérieur duquel la moyenne est calculée. En effet, ce système peut être plus petit ou plus grand que l'ex-grain β .

II.2.2. Simplifications possibles des calculs

Lors du refroidissement, un grain β peut engendrer 12 variants α . En effet, selon le signe de l'angle α (voir la Figure II-1) chaque plan $\{110\}$ de la phase β peut générer deux orientations de grains α légèrement différentes : ces grains α sont appelés variants jumeaux. La valeur de l'angle est : $\alpha = \frac{[\cos^{-1}(1/3) - \pi/3]}{2} \approx 5,264^\circ$ et par la suite la désorientation entre ces variants jumeaux est voisine de $\approx 10,5^\circ$. Pour simplifier les calculs analytiques, il est possible de considérer l'angle α comme nul. De ce fait, les variants jumeaux sont remplacés par un « pseudo-variant » unique. On ne considère donc plus les 12 vrais variants mais 6 pseudo-variants.

De plus, les composantes du tenseur de Bain vérifient $\varepsilon_3 \ll \varepsilon_1 \approx |\varepsilon_2|$. Il est donc raisonnable de poser, en première approximation, $\varepsilon_3 = 0$, et $\varepsilon_1 = -\varepsilon_2 = \varepsilon = 0,1$.

Prenant en compte ces deux simplifications, les tenseurs de Bain des 6 pseudo-variants exprimés dans le repère du grain β parent sont :

$$\begin{aligned}
 \boldsymbol{\varepsilon}^1 &= \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & 1/2 \\ 0 & 1/2 & 1/2 \end{bmatrix} \boldsymbol{\varepsilon} & \boldsymbol{\varepsilon}^2 &= \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & -1/2 \\ 0 & -1/2 & 1/2 \end{bmatrix} \boldsymbol{\varepsilon} \\
 \boldsymbol{\varepsilon}^3 &= \begin{bmatrix} 1/2 & 0 & 1/2 \\ 0 & -1 & 0 \\ 1/2 & 0 & 1/2 \end{bmatrix} \boldsymbol{\varepsilon} & \boldsymbol{\varepsilon}^4 &= \begin{bmatrix} 1/2 & 0 & -1/2 \\ 0 & -1 & 0 \\ -1/2 & 0 & 1/2 \end{bmatrix} \boldsymbol{\varepsilon} \\
 \boldsymbol{\varepsilon}^5 &= \begin{bmatrix} 1/2 & 1/2 & 0 \\ 1/2 & 1/2 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} \boldsymbol{\varepsilon} & \boldsymbol{\varepsilon}^6 &= \begin{bmatrix} 1/2 & -1/2 & 0 \\ -1/2 & 1/2 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} \boldsymbol{\varepsilon}
 \end{aligned} \tag{II-5}$$

où :

$\boldsymbol{\varepsilon}^k$ = tenseur de distorsion de Bain du k -ième pseudo variant ($1 \leq k \leq 6$) exprimé dans le repère des axes $\langle 100 \rangle$ du grain β parent, sans dimension, et

ε = valeur propre du tenseur de Bain, strictement positive, après simplification, sans dimension, ici $\varepsilon = 0,1$.

II.2.3. Calculs analytiques de sélection des variants

Les calculs analytiques servent de première approche pour la sélection de variants basée sur la minimisation de l'énergie élastique du système. Ils constituent les bases du modèle proposé dans ce chapitre, mais ils sont cependant limités. Nous ne considérons, en effet que les pseudo-variants. Dans la section II.3, un outil de calcul numérique sera proposé pour effectuer les calculs plus lourds où les 12 variants α sont pris en compte, avec beaucoup moins d'hypothèses restrictives. Pour l'instant nous présentons le calcul de sélection dans un monocristal β sur lequel est imposée une contrainte externe d'abord nulle puis non-nulle, puis les facteurs de Kearns et de sélection obtenus, et enfin, une approche d'Eshelby pour traiter le cas du polycristal β isotrope. Le cas du polycristal β texturé fait l'objet des travaux d'Humbert *et al.* [8] présentés dans la sous-section II.1.2.

a. Contrainte externe imposée nulle

Les hypothèses et simplifications étant maintenant posées, le calcul consiste à étudier tous les cas de figure possibles et à minimiser à chaque fois la norme de la déformation moyenne au sein de l'ex-grain β (système choisi) afin de déterminer les fractions des pseudo-variants correspondants. Sur la Figure II-2, les plans $\{110\}$ de la phase β sont schématisés ; la normale à chacun de ces plans est parallèle à l'axe c de la phase α hexagonale naissant sur chacun d'eux.

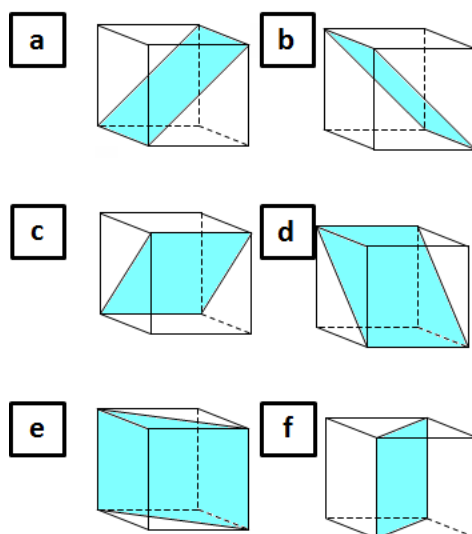


Figure II-2 : Schéma des plans $\{110\}$ d'un réseau cubique

Les détails de la méthode des calculs sont présentés dans l'annexe 1.

Dans le cas où il n'y a qu'un seul pseudo-variant, $\|\epsilon\|^2 = 0,02$, il s'agit aussi de la valeur maximale.

Dans le cas où deux pseudo-variants sont présents, $C_6^2 = 15$ combinaisons sont possibles, elles sont réparties dans deux classes en fonction des angles de désorientation entre les deux pseudo-variants : soit les 2 pseudo-variants sont désorientés à 90° (schémas a et b de la Figure II-2), soit ils sont désorientés à 60° (schéma c et d de la Figure II-2). La minimisation

de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ dans les deux cas donne deux valeurs différentes, le premier cas correspondant à une valeur de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ plus élevée que le deuxième cas. Les fractions des deux pseudo-variants assurant cette minimisation sont $\frac{1}{2}$ les deux cas.

La même procédure de calcul a été itérée pour les cas de 3, 4, 5 et 6 pseudo-variants ; les résultats sont répertoriés dans le Tableau II-1.

Tableau II-1 : Résultats des calculs analytiques avec les pseudo-variants sans contrainte externe

Nombre de pseudo-variants présents	Nombre de cas possibles	Classe et leurs occurrences	$\ \boldsymbol{\varepsilon}\ ^2$	Fraction f_k des pseudo-variants k^*
1			$\approx 0,02$	
2	15	60° : 12	$\approx 0,0063$	$f_1=f_3=1/2$
		90° : 3	$\approx 0,015$	$f_1=f_2=1/2$
3	20	3x60° : 8	$\approx 0,0017$	$f_1=f_3=f_5=1/3$
		2x60°, 90° : 12	$\approx 0,0049$	$f_1=f_2=11/40$ $f_3=9/20$
4	15	5x60°, 90° : 12	$\approx 0,001$	$f_1=f_3=9/29$ $f_3=f_4=11/58$
		4x60°, 2x90° : 3	$\approx 0,0038$	$f_3=f_4=f_5=f_6=1/4$
5	6	8x60°, 2x90° : 6	$\approx 0,0005$	$f_1=f_2=f_3=f_4=11/62$ $f_3=9/31$
6	1	12x60°, 3x90° : 1	0	$f_1=f_2=f_3=f_4=f_5=f_6=1/6$

* les indices correspondent aux indices des déformations de Bain des pseudo-variants (voir équation 5)

b. Contrainte externe imposée non-nulle

Il est possible d'introduire une contrainte externe, qui sera supposée, dans cette étude, plane, isotrope et uniforme. Elle est assimilée à une contrainte de trempe s'exerçant à la surface de l'éprouvette : elle est donc thermoélastique et peut être négative ou positive (respectivement en compression ou en tension). En effet, la nature et l'amplitude de la contrainte associée à l'effet de trempe combiné aux divers phénomènes liés à la transformation de phases ne sont pas exactement connues. Le tenseur de cette contrainte s'exerçant sur une surface libre s'écrit de la façon suivante :

$$\boldsymbol{\sigma}^{\text{th}} = \begin{bmatrix} \sigma_{//} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{//} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{II-6})$$

où :

$\boldsymbol{\sigma}^{\text{th}}$ = tenseur de contrainte thermoélastique associée à une trempe exprimé dans le repère $(\mathbf{s}, \mathbf{t}, \mathbf{n})$ défini dans la Figure II-3, en Pa, et

$\sigma_{//}$ = scalaire, en Pa.

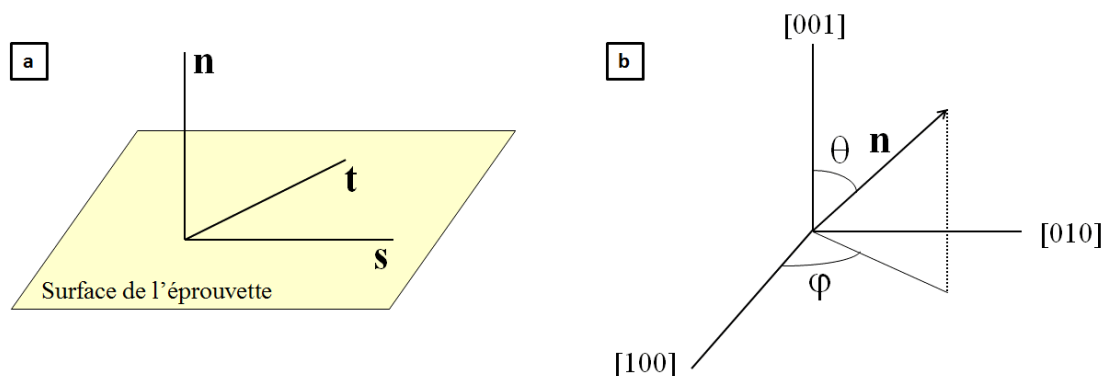


Figure II-3 : a) repère (s,t,n) associé à l'éprouvette ; b) l'orientation de la normale n définie à l'aide des angles θ et φ par rapport aux axes du repère du grain β parent

Dans l'hypothèse où le matériau est élastique linéaire et isotrope, le tenseur de déformation associé à cette contrainte est de la forme :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{//} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{//} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\perp} \end{bmatrix} \quad (\text{II-7})$$

où

$\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}}$ = tenseur de déformation thermoélastique exprimé dans le repère $(\mathbf{s}, \mathbf{t}, \mathbf{n})$, sans dimension,

$\varepsilon_{//}$ = composante parallèle à la surface de l'échantillon, sans dimension, et

ε_{\perp} = composante normale à la surface, sans dimension.

$$\varepsilon_{//} - \varepsilon_{\perp} = \frac{\sigma_{//}}{2\mu}$$

L'orientation de la normale à la surface est définie par deux angles, θ et φ par rapport aux axes $\langle 100 \rangle$ du grain β parent, comme indiqué sur la Figure II-3.

Afin d'additionner la déformation due à la contrainte externe à la distorsion de Bain, il est nécessaire d'exprimer les deux types de déformation dans un même repère. Le repère choisi pour le présent calcul est celui du grain β parent.

La matrice de passage du repère du grain β parent au repère de l'échantillon s'écrit comme suit :

$$\mathbf{P} = \begin{bmatrix} -\sin \varphi & -\cos \theta \cos \varphi & \sin \theta \cos \varphi \\ \cos \varphi & -\cos \theta \sin \varphi & \sin \theta \sin \varphi \\ 0 & \sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (\text{II-8})$$

où

\mathbf{P} = matrice de passage du repère β parent au repère de l'échantillon, sans dimension,

(θ, φ) = angles définissant la normale à la surface de l'échantillon, en ° ou rad.

L'expression de la déformation thermoélastique exprimée dans le repère du grain β parent est donnée par la relation,

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\beta}^{\text{ext}} = \mathbf{P} \boldsymbol{\varepsilon}_{(\text{s,t,n})}^{\text{ext}} \mathbf{P}^T \quad (\text{II-9})$$

La déformation externe étant maintenant exprimée dans le même repère que la distorsion de Bain, la détermination des fractions volumiques f_k des pseudo-variants peut être effectuée par minimisation de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ avec $N \leq 6$. En général, il faut noter que $\text{tr} \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ext}} \neq 0$. Cette contribution sphérique modifie le minimum de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ mais n'a aucune influence sur la sélection de variants, exclusivement pilotée, ici, par la partie déviatorique de l'énergie élastique. En vue d'une comparaison avec les résultats expérimentaux où la présence des 6 axes c des grains α est fréquemment observée, nous étudions dans ce paragraphe le cas $N=6$. Ceci conduit à 6 équations à 6 inconnues qui peuvent être facilement résolues en prenant en compte la relation $\sum_{k=1}^6 f_k = 1$.

Les solutions s'écrivent sous la forme :

$$\forall k \in \{1, \dots, 6\}, f_k = \frac{1}{6} + \frac{\sigma_{//}}{72\mu\varepsilon} Y_k(\theta, \varphi) \quad (\text{II-10})$$

où

Y_k = fonction trigonométrique spécifique, sans dimension (donnée en annexe 1).

En l'absence de contrainte extérieure $\sigma_{//}$, on retrouve la solution triviale et unique $f_1 = \dots = f_6 = 1/6$. Cependant les solutions de fractions ne sont physiques que si elles sont positives. En imposant que toutes les fractions f_k soient positives pour toutes les valeurs de θ et φ , nous définissons un intervalle de variation de la contrainte thermoélastique $\sigma_{//}$. Ce domaine de validité à 6 pseudos-variants présents $\forall(\theta, \varphi)$ est le suivant :

$$-\frac{6}{11}\varepsilon < \frac{\sigma_{//}}{\mu} < \frac{6}{1+3\sqrt{10}}\varepsilon \quad (\text{II-11})$$

Avec $\varepsilon = 0,1$, ce domaine est $-0,055 \leq \sigma_{//}/\mu \leq 0,057$. La contrainte thermoélastique associée à une trempe, avec la présence des six axes c doit se trouver dans cet intervalle, dans le cadre du modèle.

c. Facteur de Kearns

La configuration cristallographique des grains α peut être caractérisée par le facteur de Kearns [14][15] relatif à la normale à la surface de l'éprouvette. Posons $\psi_k = (\mathbf{c}_k, \mathbf{n})$, l'angle entre la direction de l'axe \mathbf{c}_k des grains α et la normale à la surface de l'échantillon. Le facteur de Kearns K_n est défini par $K_n = \sum_{k=1}^6 f_k \cos^2 \psi_k$. En introduisant les valeurs des f_k de la relation (II-10) ci-dessus, l'expression générale du K_n s'écrit :

$$K_n = \frac{1}{3} + \frac{\sigma_{//}}{72\mu\epsilon} T(\theta, \varphi), \quad (\text{II-12})$$

où

T = fonction trigonométrique spécifique, sans dimension.

Les deux autres facteurs de Kearns, K_s et K_t , sont associés respectivement aux directions \mathbf{s} et \mathbf{t} . La somme des trois facteurs de Kearns $K_n + K_s + K_t = 1$. De plus, compte tenu de la symétrie du cas étudié, $K_s = K_t$, ce qui mène à la relation $K_s = K_t = (1 - K_n)/2$. La valeur de K_n reflète la texture de l'échantillon : plus K_n est grand, plus les axes c des grains α sont proches de la normale et dans le cas contraire, si K_n est faible, les axes c sont proches de la surface de l'éprouvette. Et $K_n = K_s = K_t = 1/3$ dans le cas sans sélection de variants.

d. Transformation dans un polycristal

Jusqu'à maintenant, nous n'avons pris en considération qu'une éprouvette monocristalline. Il est cependant intéressant de considérer l'interaction entre un ex-grain β et le polycristal environnant quand ils subissent la transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$. Nous conservons toujours l'hypothèse de l'élasticité linéaire et admettons que la transformation de phase est instantanée. Ainsi, nous considérons que la matrice infinie a les propriétés élastiques de la phase α supposée isotrope – sans texture macroscopique – et qu'elle subit une déformation de Bain moyenne égale à la partie sphérique de la transformation de Bain d'un variant – ils ont tous la même. Il faut noter le contre-pied avec les hypothèses d'Humbert *et al.* [8] qui s'intéressent à l'influence de la texture initiale et considèrent un embryon α dans une matrice entièrement β . En cohérence avec l'hypothèse d'instantanéité de la transformation, nous ne prenons pas en compte les dilatations thermiques, ni de la matrice, ni de l'ex-grain β considéré, pendant la transformation. Il serait cependant aisé de les ajouter à la transformation libre de contraintes dans les calculs qui suivent.

Nous souhaitons utiliser la méthode de l'inclusion équivalente d'Eshelby – l'inclusion étant l'ex-grain β étudié – pour estimer l'accommodation de la déformation qui résulte de l'interaction avec la matrice. *A priori* les propriétés élastiques de l'ex-grain β transformé en α dépendent du détail de sa microstructure, au moins des fractions des variants, ce qui rend complexe le problème de minimisation d'énergie. À la place, il est commode d'envisager le cas où l'agrégat de variants α est globalement isotrope, l'inclusion *homogène* à la place de l'inclusion *équivalente* d'Eshelby. Toutefois, cette inclusion subit une déformation libre de

contraintes, qui est égale à la différence entre la déformation de Bain moyenne dans l'ex-grain β considéré – qui dépend effectivement des variants – et de la déformation de Bain moyenne dans la matrice, soit la partie sphérique de la déformation de Bain d'un variant.

Concrètement, cette transformation libre de contraintes est ainsi le déviateur de la déformation de Bain moyenne dans l'inclusion.

Finalement, pour une inclusion *ellipsoïdale*, la théorie de l'inclusion homogène fournit la déformation – qui est homogène – de l'inclusion :

$$\varepsilon^{ij} = S_{kl}^{ij} \varepsilon_B'^{kl} \quad (\text{II-13})$$

où S est le tenseur d'Eshelby de l'inclusion et ε_B' le déviateur de la déformation moyenne dans l'inclusion.

Pour une inclusion sphérique, le tenseur d'Eshelby ne dépend que de ν , le coefficient de Poisson de la phase α isotrope, et s'écrit (les autres composantes sont nulles) :

$$S_{11}^{11} = S_{22}^{22} = \dots = S_{11} = \frac{7 - 5\nu}{15(1 - \nu)}$$

$$S_{11}^{22} = S_{22}^{33} = \dots = S_{12} = \frac{5\nu - 1}{15(1 - \nu)}$$

$$S_{12}^{12} = S_{23}^{23} = \dots = S_{44} = \frac{4 - 5\nu}{15(1 - \nu)}$$

Comme le tenseur d'Eshelby est commun à tous les variants, il est commode de le distribuer directement dans la somme (II-3) sur les déformations de Bain des pseudo-variants données par les définitions (II-5), en notant,

$$A = S_{11} - S_{12} = \frac{8 - 10\nu}{15(1 - \nu)} = 2S_{44},$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_E^1 &= \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & 1/4 \\ 0 & 1/4 & 1/2 \end{bmatrix} A\varepsilon & \varepsilon_E^2 &= \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & -1/4 \\ 0 & -1/4 & 1/2 \end{bmatrix} A\varepsilon \\ \varepsilon_E^3 &= \begin{bmatrix} 1/2 & 0 & 1/4 \\ 0 & -1 & 0 \\ 1/4 & 0 & 1/2 \end{bmatrix} A\varepsilon & \varepsilon_E^4 &= \begin{bmatrix} 1/2 & 0 & -1/4 \\ 0 & -1 & 0 \\ -1/4 & 0 & 1/2 \end{bmatrix} A\varepsilon \\ \varepsilon_E^5 &= \begin{bmatrix} 1/2 & 1/4 & 0 \\ 1/4 & 1/2 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} A\varepsilon & \varepsilon_E^6 &= \begin{bmatrix} 1/2 & -1/4 & 0 \\ -1/4 & 1/2 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} A\varepsilon \end{aligned} \quad (\text{II-14})$$

La méthode de minimisation reste ensuite inchangée en remplaçant les déformations de Bain ε^k par ces ε_E^k (pour Eshelby).

II.3. Automate cellulaire

Les calculs analytiques atteignent rapidement leurs limites. Un outil numérique est nécessaire pour aller plus loin dans notre raisonnement. Un automate cellulaire écrit en Fortran 95 est proposé pour traiter les calculs plus complexes, faisant intervenir des paramètres physiques plus nombreux.

II.3.1. Description de l'automate pré-existant

Suite à la publication du principe de base de minimisation de la distorsion moyenne du matériau lors du refroidissement [11], une modélisation de type automate cellulaire a été mise en place [16][17].

L'automate cellulaire est constitué d'un agencement de cellules, toutes identiques, formant un réseau mono-, bi- ou tridimensionnel. Pour une première approche, un réseau en 2 dimensions est considéré comme un bon compromis entre la facilité de programmation et une représentation physique suffisante du modèle.

Des cellules hexagonales sont choisies car elles présentent une meilleure isotropie que des cellules carrées et pour simuler des grains équiaxes en 2D. Les cellules hexagonales présentent aussi l'avantage d'avoir 6 voisins, comme en moyenne les grains sur une section plane quand on veut simuler une microstructure colonnaire perpendiculaire à l'automate. La Figure II-4 montre un tel arrangement d'hexagones de taille 8×8 .

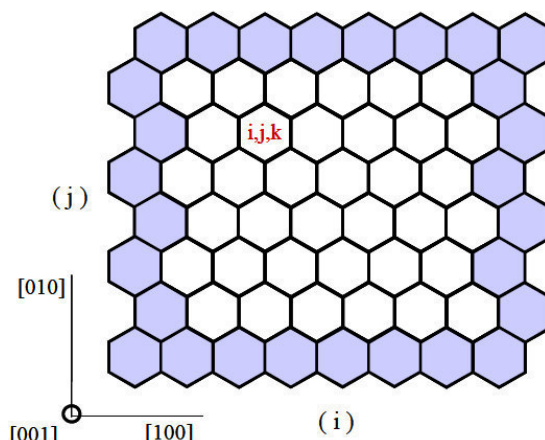


Figure II-4 : Schéma de l'automate cellulaire bidimensionnel

Les cellules colorées en bleu sur la Figure II-4 sont des cellules virtuelles, qui permettent de considérer le système, soit comme périodique, soit comme bordé par des cellules de nature arbitraire (par exemple de phase β). Ainsi, les cellules situées aux frontières de l'automate peuvent être traitées comme les autres. La taille de cet automate est de 51×51 soit 2601 cellules appartenant toutes à un même grain initialement β dont l'orientation est spécifiée sur la Figure II-4 : le plan de l'automate correspond à un plan $\{100\}$ de la phase β . On considère maintenant les 12 variants, c'est-à-dire qu'un grain β peut engendrer 12 orientations de grains α différentes. Chaque cellule est repérée par trois nombres entiers i, j, k . Les deux premiers définissent sa position dans l'automate (colonne i , ligne j). Le dernier indice, k , désigne le

grain en phase β si $k=0$, sinon il est compris entre 1 et 12, et indique alors le variant α sélectionné. Pour un état donné de l'automate cellulaire, on calcule la distorsion moyenne associée à la transformation de phases :

$$\langle \varepsilon^k \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i,j} \varepsilon^{k(i,j)} \quad (\text{II-15})$$

où N désigne le nombre de cellules transformées, ε^k sont définis en (II-5), $\varepsilon^0 = 0$ (phase β non-transformée) et $\{\langle \varepsilon^k \rangle, k=1, \dots, 12\}$ est l'ensemble des 12 tenseurs de distorsion moyenne possible suivant le choix du variant de la cellule à transformer dans l'état donné de l'automate.

À ce stade, l'automate est considéré comme un monocristal β à l'état initial, isolé.

La phase β parente peut être déformée avant la transformation de phases, sans spécifier l'origine de cette déformation, le tenseur de déformation externe $\varepsilon^{ext}(i, j)$ s'ajoute alors à la déformation propre de chaque cellule. La sélection de variants se fait désormais sur la base de la minimisation de la norme de $\langle \varepsilon^k + \varepsilon^{ext} \rangle$.

Ce premier modèle se présente sous deux versions :

- la version dite « thermodynamique » qui consiste à rechercher l'état du système qui minimise la distorsion moyenne. Ceci implique que l'automate choisit la combinaison optimale quitte à rechanger l'état d'une cellule déjà transformée ;
- la version dite « cinétique » dont le principe est le même, c'est-à-dire que la sélection se fait par minimisation de la norme de la déformation moyenne, la différence avec la version précédente étant qu'une fois qu'une cellule a été transformée en α , son état ne peut plus être modifié.

Cette dernière version semble plus proche de la réalité dans le sens où une fois qu'un grain α germe, il ne change plus d'orientation. Le programme démarre avec la transformation d'une cellule d'amorçage choisie arbitrairement. Puis une deuxième cellule est tirée de façon aléatoire. Le programme choisit alors parmi les douze variants celui qui minimise la norme de la déformation moyenne. Ensuite une autre cellule est tirée et la sélection s'effectue selon la même procédure.

Cette première approche a permis de retrouver certains résultats obtenus avec les calculs analytiques. L'influence de la déformation introduite avant la transformation de phase a été confirmée. Cependant, la version « cinétique », en général, ne conduit pas au minimum absolu alors que la version « thermodynamique » tend vers ce minimum absolu. En effet, l'automate choisit une seule solution quand les calculs analytiques en trouvent souvent plusieurs. Néanmoins, c'est la version cinétique que nous utilisons par la suite.

II.3.2. Implémentation de nouveaux paramètres

Certains paramètres sont introduits dans le modèle original, dans sa version « cinétique », afin d'identifier leur influence sur la sélection de variants. Nous nous concentrons essentiellement sur l'effet d'une contrainte plane sur la sélection de variants. De nombreuses simplifications ont été faites dans l'approche analytique précédente ; nous commençons donc par identifier

l'impact de celles-ci. De plus, un automate plus grand, constitué de 100×100 soit 10 000 cellules, est mis en place afin d'obtenir des résultats plus statistiques. Alors que, la version précédente ne considérait qu'un grain β isolé, la prise en compte de l'environnement est effectuée via une approche d'Eshelby. Par ailleurs, l'anisotropie élastique du cristal hexagonal α est prise en compte. Enfin, un automate cellulaire constitué de 4 grains β a été mis en place. Tous ces paramètres sont étudiés en présence ou non d'une contrainte plane.

a. Accommodation d'Eshelby

Le calcul avec accommodation d'Eshelby a été présenté dans le cas des pseudo-variants. Nous considérons maintenant les 12 variants. Les tenseurs de déformation de Bain des 12 variants sans accommodation d'Eshelby exprimés dans le repère $\langle 100 \rangle$ du grain β parent sont :

$$\begin{aligned} \epsilon_B^1 &= \begin{bmatrix} c & d & d \\ d & a & b \\ d & b & a \end{bmatrix} & \epsilon_B^2 &= \begin{bmatrix} c & -d & -d \\ -d & a & b \\ -d & b & a \end{bmatrix} & \epsilon_B^3 &= \begin{bmatrix} c & d & -d \\ d & a & -b \\ -d & -b & a \end{bmatrix} & \epsilon_B^4 &= \begin{bmatrix} c & -d & d \\ -d & a & -b \\ d & -b & a \end{bmatrix} \\ \epsilon_B^5 &= \begin{bmatrix} a & d & b \\ d & c & d \\ b & d & a \end{bmatrix} & \epsilon_B^6 &= \begin{bmatrix} a & -d & b \\ -d & c & -d \\ b & -d & a \end{bmatrix} & \epsilon_B^7 &= \begin{bmatrix} a & -d & -b \\ -d & c & d \\ -b & d & a \end{bmatrix} & \epsilon_B^8 &= \begin{bmatrix} a & d & -b \\ d & c & -d \\ -d & -d & a \end{bmatrix} \\ \epsilon_B^9 &= \begin{bmatrix} a & b & d \\ b & a & d \\ d & d & c \end{bmatrix} & \epsilon_B^{10} &= \begin{bmatrix} a & b & -d \\ b & a & -d \\ -d & -d & c \end{bmatrix} & \epsilon_B^{11} &= \begin{bmatrix} a & -b & d \\ -b & a & -d \\ d & -d & c \end{bmatrix} & \epsilon_B^{12} &= \begin{bmatrix} a & -b & -d \\ -b & a & d \\ -d & d & c \end{bmatrix} \end{aligned}$$

où

$$\begin{aligned} a &= \frac{\cos^2 \alpha}{2} \epsilon_1 + \frac{\sin^2 \alpha}{2} \epsilon_2 + \frac{\epsilon_3}{2} & b &= \frac{\cos^2 \alpha}{2} \epsilon_1 + \frac{\sin^2 \alpha}{2} \epsilon_2 - \frac{\epsilon_3}{2} \\ c &= \epsilon_1 \sin^2 \alpha + \epsilon_2 \cos^2 \alpha & d &= \frac{\sin \alpha \cos \alpha}{\sqrt{2}} (\epsilon_1 - \epsilon_2) \end{aligned}$$

avec $\epsilon_1 = 0,1$; $\epsilon_2 = -0,1$; $\epsilon_3 = 0,02$ et $\alpha = 5,264^\circ$.

Avec l'accommodation d'Eshelby, les 12 tenseurs s'écrivent de la manière suivante :

$$\mathbf{\epsilon}_E^1 = \begin{bmatrix} \frac{2}{3}(c-a) & \frac{d}{2} & \frac{d}{2} \\ \frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & \frac{b}{2} \\ \frac{d}{2} & \frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A \quad \mathbf{\epsilon}_E^2 = \begin{bmatrix} \frac{2}{3}(c-a) & -\frac{d}{2} & -\frac{d}{2} \\ -\frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & \frac{b}{2} \\ -\frac{d}{2} & \frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A$$

$$\mathbf{\epsilon}_E^3 = \begin{bmatrix} \frac{2}{3}(c-a) & \frac{d}{2} & -\frac{d}{2} \\ \frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{b}{2} \\ -\frac{d}{2} & -\frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A \quad \mathbf{\epsilon}_E^4 = \begin{bmatrix} \frac{2}{3}(c-a) & -\frac{d}{2} & \frac{d}{2} \\ -\frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{b}{2} \\ \frac{d}{2} & -\frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A$$

$$\mathbf{\epsilon}_E^5 = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & \frac{d}{2} & \frac{b}{2} \\ \frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) & \frac{d}{2} \\ \frac{b}{2} & \frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A \quad \mathbf{\epsilon}_E^6 = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{d}{2} & \frac{b}{2} \\ -\frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) & -\frac{d}{2} \\ \frac{b}{2} & -\frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A$$

$$\mathbf{\epsilon}_E^7 = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{d}{2} & -\frac{b}{2} \\ -\frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) & \frac{d}{2} \\ -\frac{b}{2} & \frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A \quad \mathbf{\epsilon}_E^8 = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & \frac{d}{2} & -\frac{b}{2} \\ \frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) & -\frac{d}{2} \\ -\frac{b}{2} & -\frac{d}{2} & -\frac{(c-a)}{3} \end{bmatrix} A$$

$$\mathbf{\epsilon}_E^9 = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & \frac{b}{2} & \frac{d}{2} \\ \frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & \frac{d}{2} \\ \frac{d}{2} & \frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) \end{bmatrix} A \quad \mathbf{\epsilon}_E^{10} = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & \frac{b}{2} & -\frac{d}{2} \\ \frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{d}{2} \\ -\frac{d}{2} & -\frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) \end{bmatrix} A$$

$$\mathbf{\epsilon}_E^{11} = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{b}{2} & \frac{d}{2} \\ -\frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{d}{2} \\ \frac{d}{2} & -\frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) \end{bmatrix} A \quad \mathbf{\epsilon}_E^{12} = \begin{bmatrix} -\frac{(c-a)}{3} & -\frac{b}{2} & -\frac{d}{2} \\ -\frac{b}{2} & -\frac{(c-a)}{3} & \frac{d}{2} \\ -\frac{d}{2} & \frac{d}{2} & \frac{2}{3}(c-a) \end{bmatrix} A$$

avec

$$A = \frac{8 - 10\nu}{15(1 - \nu)}$$

La trace de chacun des 12 tenseurs est égale à 0, en effet, la matrice environnante subit la même variation de volume que l'ex-grain β étudié entre l'état initial et l'état entièrement transformé, tous les variants ayant la même variation de volume.

b. Anisotropie du cristal hexagonal

Afin de simplifier les calculs présents, nous les avons effectués comme si chaque variant α était isotrope. Cependant, les grains α possèdent une symétrie hexagonale. Il est donc nécessaire d'introduire la matrice d'élasticité de la maille hexagonale. L'élasticité du cristal hexagonal est axisymétrique, et on ne distingue pas les axes x_1 et x_2 . Cette matrice d'élasticité possède 5 composantes indépendantes, elle prend la forme présentée dans la définition (II-16) dans le repère du cristal où x est colinéaire à l'axe c.

$$\underline{\underline{C}} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{11} - C_{12} \end{bmatrix} \quad (\text{II-16})$$

Les valeurs numériques de ces composantes sont référencées dans le livre de Kocks *et al.* [18] :

$$C_{11} = 143,5$$

$$C_{33} = 164,9$$

$$C_{44} = 64,2$$

$$C_{12} = 72,5$$

$$C_{13} = 65,4$$

Ces coefficients sont exprimés en GPa.

Cette matrice doit être exprimée dans le repère du grain β parent, et comme il a été dit précédemment, les axes x_1 et x_2 sont équivalents. De ce fait, les variants jumeaux seront associés à la même matrice d'élasticité. Si l'on considère le repère β parent, nous avons donc 6 matrices d'élasticité, chacune d'entre elles étant associée à deux variants jumeaux spécifiques :

$$\begin{aligned}
 \underline{\underline{C^1}} &= \begin{bmatrix} C_{11} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & 0 & 0 \\ \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 & 0 \\ \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{13}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} & \frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} \end{bmatrix} \\
 \underline{\underline{C^2}} &= \begin{bmatrix} C_{11} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & -\frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & 0 & 0 \\ \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 & 0 \\ \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 & 0 \\ -\frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{13}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} & -\frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} \end{bmatrix} \\
 \underline{\underline{C^3}} &= \begin{bmatrix} \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & 0 & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 \\ \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & C_{11} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & 0 & \frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & 0 \\ \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & 0 & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} & 0 & \frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} \\ \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & \frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & \frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{13}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} & 0 & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} \end{bmatrix} \\
 \underline{\underline{C^4}} &= \begin{bmatrix} \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & 0 & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 \\ \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & C_{11} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & 0 & -\frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & 0 \\ \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{44}+2C_{13}}{4} & \frac{C_{12}+C_{13}}{2} & \frac{C_{11}+C_{33}+2C_{44}+2C_{13}}{4} & 0 & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} & 0 & -\frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} \\ -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & -\frac{\sqrt{2}(C_{12}-C_{13})}{2} & -\frac{\sqrt{2}(C_{11}-C_{33})}{4} & 0 & \frac{C_{11}+C_{33}-2C_{13}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{C_{11}-C_{44}-C_{12}}{2} & 0 & \frac{C_{11}+C_{44}-C_{12}}{2} \end{bmatrix}
 \end{aligned}$$

$$\underline{\underline{C}}^5 = \begin{bmatrix} \frac{C_{11} + C_{33} + 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{11} + C_{33} - 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} \\ \frac{C_{11} + C_{33} - 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{11} + C_{33} + 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} \\ \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & C_{11} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}(C_{12} - C_{13})}{2} \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11} + C_{44} - C_{12}}{2} & \frac{C_{11} - C_{44} - C_{12}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11} - C_{44} - C_{12}}{2} & \frac{C_{11} + C_{44} - C_{12}}{2} & 0 \\ \frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} & \frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} & \frac{\sqrt{2}(C_{12} - C_{13})}{2} & 0 & 0 & \frac{C_{11} + C_{33} - 2C_{13}}{2} \end{bmatrix}$$

$$\underline{\underline{C}}^6 = \begin{bmatrix} \frac{C_{11} + C_{33} + 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{11} + C_{33} - 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & 0 & 0 & -\frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} \\ \frac{C_{11} + C_{33} - 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{11} + C_{33} + 2C_{44} + 2C_{13}}{4} & \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & 0 & 0 & -\frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} \\ \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & \frac{C_{12} + C_{13}}{2} & C_{11} & 0 & 0 & -\frac{\sqrt{2}(C_{12} - C_{13})}{2} \\ 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11} + C_{44} - C_{12}}{2} & -\frac{C_{11} - C_{44} - C_{12}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{C_{11} - C_{44} - C_{12}}{2} & \frac{C_{11} + C_{44} - C_{12}}{2} & 0 \\ -\frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} & -\frac{\sqrt{2}(C_{11} - C_{33})}{4} & -\frac{\sqrt{2}(C_{12} - C_{13})}{2} & 0 & 0 & \frac{C_{11} + C_{33} - 2C_{13}}{2} \end{bmatrix}$$

La matrice d'élasticité $\underline{\underline{C}}^1$ est associée aux variants 1 et 2 et ainsi de suite. À chaque pas dans le programme, quand un variant est sélectionné, il est associé avec la matrice d'élasticité anisotrope correspondante puis l'énergie élastique du système est minimisée. Le résultat de cette minimisation diffère de la minimisation de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ (cf. II.4.2b)

c. Présence d'une contrainte plane

Dans les versions précédentes de l'automate cellulaire, une contrainte initiale a déjà été introduite afin d'évaluer son influence sur la sélection de variants. Ces contraintes sont exprimées sous la forme de cisaillement, de compression ou de traction dans une direction donnée. Le calcul analytique de la sélection de variants en présence d'une contrainte plane a été effectué dans le cas des pseudo-variants (cf. II.2.3b). La présence de cette contrainte plane est implémentée dans l'automate, pour étudier son influence sur la sélection de variants en complémentarité avec les autres paramètres. Cette contrainte plane simule l'effet de trempe à la surface d'une éprouvette. À notre connaissance, le signe de cette contrainte n'est pas encore clairement établi : il peut s'agir d'une compression ou d'une traction ou l'alternance des deux au cours de la trempe. Nous étudions les deux cas. L'intervalle choisi est déterminé par le calcul analytique dans le cas où les 6 pseudo-variants sont présents.

d. Assemblage de quatre grains β

Jusqu'à présent, le programme ne considérait qu'un seul grain β dont l'orientation peut être choisie et nous avons étudié l'influence de cette orientation sur la sélection de variants. Maintenant, un assemblage de 4 ex-grains β est mis en place pour étudier l'interaction de l'orientation de l'ex-grain β avec son voisinage. Ainsi, l'influence du voisinage d'un ex-grain β est étudiée, avec des voisins immédiats d'orientations similaires ou différentes. Pour respecter la périodicité de l'automate, les 4 ex-grains β sont agencés selon le schéma de la Figure II-5.

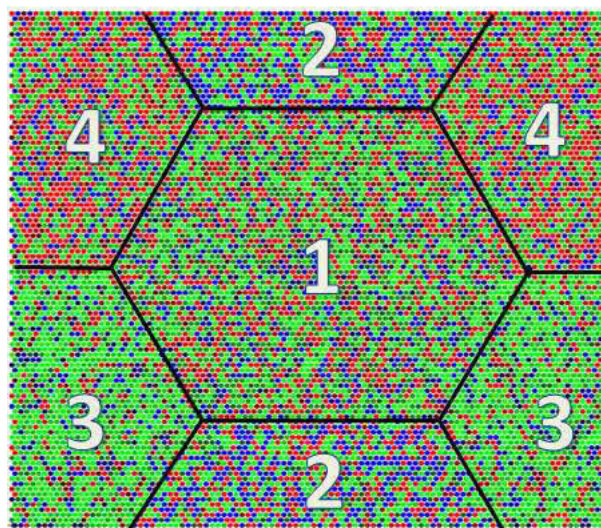


Figure II-5 : Réseau de 4 ex-grains β dans un automate 101×101

Étant données les diverses orientations des ex-grains β , il est plus aisé, dans ce cas, de travailler dans le repère de l'éprouvette. Pour les études de cas spécifiques, trois orientations usuelles ont été choisies : $\{100\}$, $\{111\}$ et $\{110\}$ (voir Figure II-6).

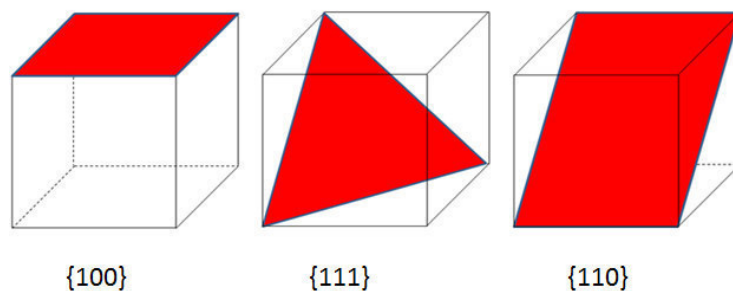


Figure II-6 : Orientations usuelles des ex-grains β , le cube correspond à la maille β , le plan coloré en rouge est la surface de l'éprouvette

Pour un ex-grain β d'orientation $\{hkl\}$, un des plans de type $\{hkl\}$ est parallèle à la surface de l'éprouvette.

Cet assemblage de grains est ensuite utilisé pour confronter les résultats expérimentaux faisant intervenir une trempe en surface, en introduisant dans le modèle les orientations des ex-grains β observés sur cette surface.

II.4. Résultats des modèles de sélection de variants

Les bases de la sélection de variants par minimisation de l'énergie élastique du système ont été posées. Les principes et les calculs, qu'ils soient analytiques ou numériques, ont été présentés dans les sections précédentes. Dans la présente section, sont analysés, d'abord, les résultats du calcul analytique, en présence des 6 pseudo-variants, avec et sans accommodation d'Eshelby et avec ou sans la présence d'une contrainte plane. Par la suite, sont présentés les résultats du calcul numérique effectué au moyen de l'automate cellulaire qui prend en compte les 12 vrais variants, avec les mêmes paramètres que pour les calculs analytiques, ainsi que les autres paramètres cités dans la section précédente. Enfin, les deux types de calcul sont confrontés.

Un schéma des alternatives successives dans la réalisation des calculs est présenté sur la Figure II-7.

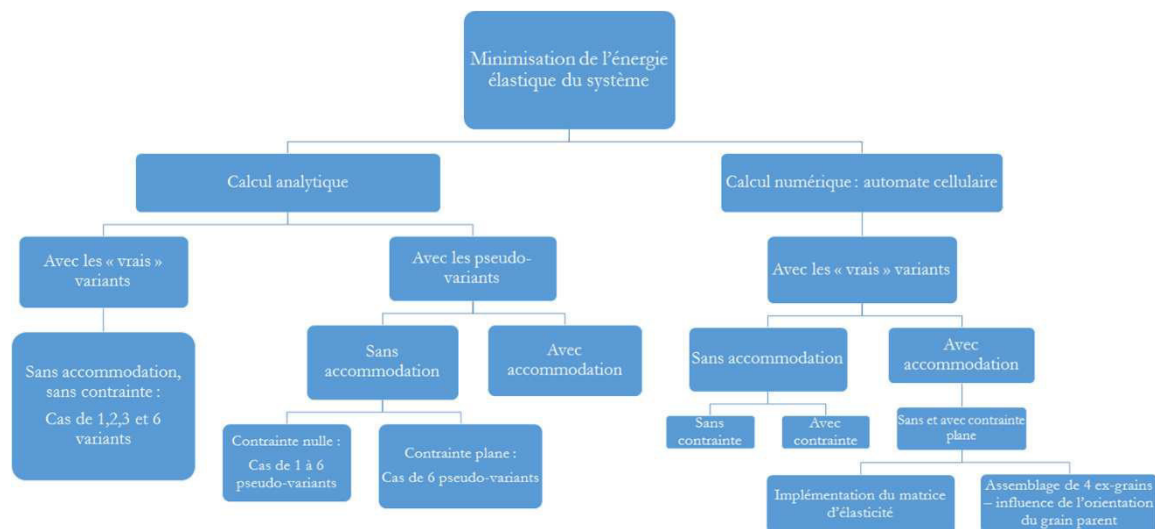


Figure II-7 : Schéma récapitulatif des résultats de la modélisation

II.4.1. Résultats analytiques

Les résultats concernant le cas des vrais variants sont présentés dans la référence [11]. Pour le cas de 2 et 3 variants, les auteurs déterminent les fractions des variants sélectionnés afin de minimiser l'énergie élastique du système. Il existe plusieurs solutions pour chacun des cas, la conclusion finale étant que six variants suffisent pour atteindre le minimum absolu d'énergie. Au-delà de six variants, il y a une infinité de solutions pour minimiser l'énergie.

La minimisation de l'énergie du système dans le cas de 1 à 6 pseudo-variants donne les résultats qui sont portés sur le graphe de la Figure II-8. Dans les cas de 2, 3 ou 4 pseudo-variants, deux minima existent mais seul le minimum absolu est représenté. Sur la Figure II-8, à gauche les $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$, adimensionnés par rapport au d'un seul variant formé, sont présentés sur une échelle linéaire et à droite sur une échelle logarithmique. Dans les deux cas, il n'y a ni accommodation, ni contrainte externe appliquée.

En présence des 6 pseudo-variants, la minimisation de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ conduit à sa nullité car dans les simplifications utilisées, la trace $\text{tr}\boldsymbol{\varepsilon}_B = 0$. Par contre, le minimum est >0 avec la déformation de Bain sans simplification.

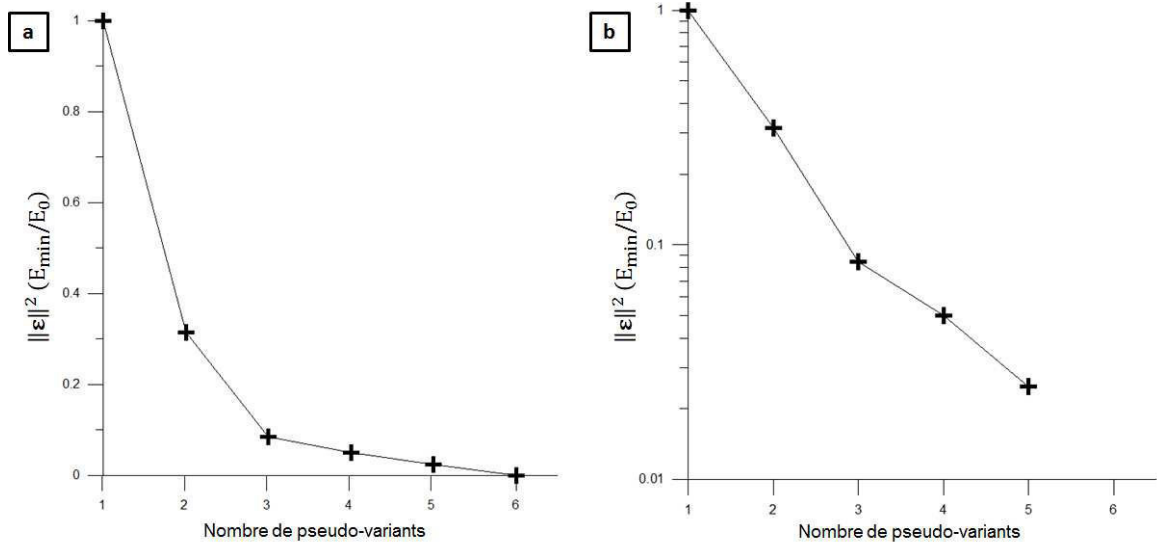


Figure II-8 : Minimisation de l'énergie pour toutes les combinaisons de pseudo-variants en : a) échelle linéaire ; b) échelle logarithmique

En présence d'une contrainte plane, seul le cas des 6 pseudo-variants a été traité. De plus, selon l'orientation du grain β par rapport à la surface de l'échantillon, l'effet de la contrainte varie. L'intervalle de validité de la contrainte a été défini dans l'expression (II-11).

L'orientation de l'ex-grain β est définie par deux angles θ et φ . Le facteur de Kearns des axes c par rapport à la normale de l'échantillon permet d'évaluer l'effet de la contrainte sur la sélection des variants.

Une cartographie des valeurs des facteurs de Kearns est présentée pour chacun des deux types de contrainte sur la Figure II-9. Les contraintes choisies respectent les conditions pour garder la présence simultanée des 6 pseudo-variants lors de la minimisation. Pour exacerber l'effet de la compression ou la traction, une contrainte forte a été choisie égale à 5 % de μ , même si cette contrainte dépasse largement la contrainte d'écoulement du Zy-4 à la température de transformation.

Avec E_{\min} les minima absolus de chacun des cas et E_0 est le $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ dans le cas d'un seul pseudo-variant proportionné à lui-même, c'est le cas de référence.

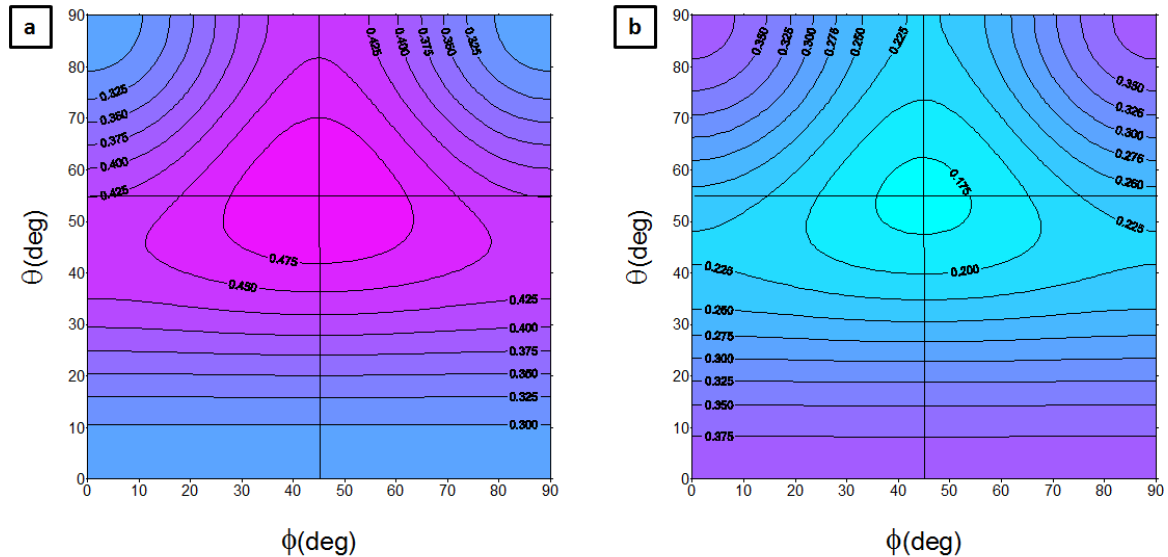


Figure II-9 : Cartes du facteur de Kearns dans la direction normale à la surface de l'éprouvette en fonction des angles θ et ϕ , définis sur la Figure II-3 : a) en compression avec $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; b) en traction avec $\sigma_{//} / \mu = +0,05$

En compression, le maximum ($K_n \approx 0,499$) est atteint quand un plan $\{111\}$ est parallèle à la surface de l'échantillon. Les valeurs de K_n les plus faibles ($K_n \approx 0,278$) sont observées lorsque l'un des plans $\{100\}$ est parallèle à la surface de l'éprouvette.

En traction, l'inverse est plutôt observé. Les maxima ($K_n \approx 0,389$) sont observés quand les plans de $\{100\}$ sont parallèles à la surface de l'éprouvette, alors que le minimum ($K_n \approx 0,168$) est obtenu quand un des plans $\{111\}$ est parallèle à la surface trempée.

Le cas de la compression présente un maximum plus élevé que dans le cas de la traction, et un minimum moins faible.

II.4.2. Résultats obtenus à l'aide de l'automate cellulaire

a. Influence de l'accommodation d'Eshelby

Afin de comparer avec les résultats analytiques, les mêmes cartes de K_n ont été recalculées dans le cas des 12 vrais variants à l'aide de l'automate cellulaire. Sur la Figure II-10a) et b), sont représentées les deux cartes des K_n en fonction de l'orientation de l'ex-grain β par rapport à la surface de l'éprouvette, sans accommodation d'Eshelby. En a), la contrainte est une compression et en b) c'est une traction. Sur la même figure, en c) et d), sont représentées les cartes de K_n , équivalentes aux précédentes, mais prenant en compte l'accommodation d'Eshelby.

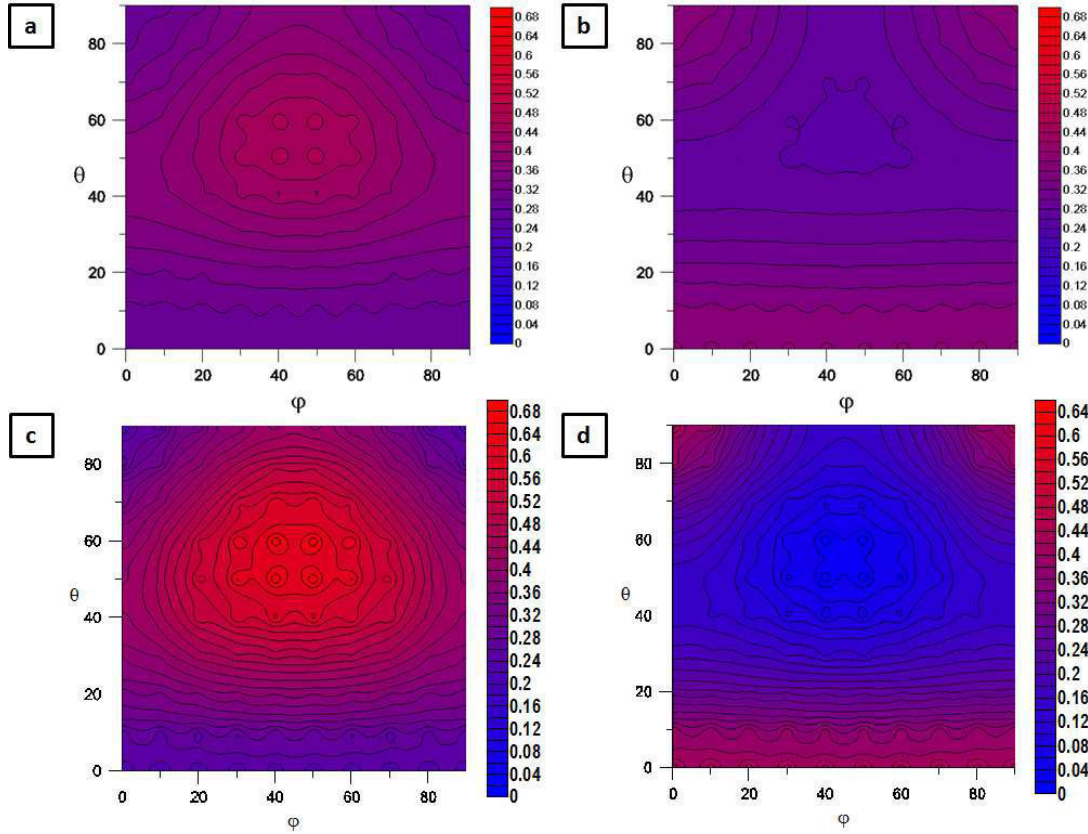


Figure II-10 : Cartes des K_n en fonction des angles θ et φ : a) sans accommodation, $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; b) sans accommodation, $\sigma_{//} / \mu = +0,05$; c) avec accommodation, $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; d) avec accommodation, $\sigma_{//} / \mu = +0,05$

Les tendances sont les mêmes dans les deux cas, cependant les maxima sont plus élevés et les minima plus faibles avec l'accommodation.

Après ce balayage en θ et φ , les trois orientations usuelles $\{100\}$, $\{111\}$ et $\{110\}$ sont fixées afin d'observer les variations de K_n et de $\|\epsilon\|^2$ dans l'intervalle $-0,05 \leq \sigma_{//} / \mu \leq +0,05$. Nous allons encore une fois comparer les deux cas de figure : sans et avec accommodation.

Sur la Figure II-11, les cas où l'orientation de l'ex-grain β est de type $\{100\}$ sont présentés en a) sans accommodation et en b) avec accommodation ; pour les orientations de type $\{111\}$, en c) le cas non accommodé et en d) le cas accommodé ; enfin, en e) et f), les orientations de type $\{110\}$, sans et avec accommodation.

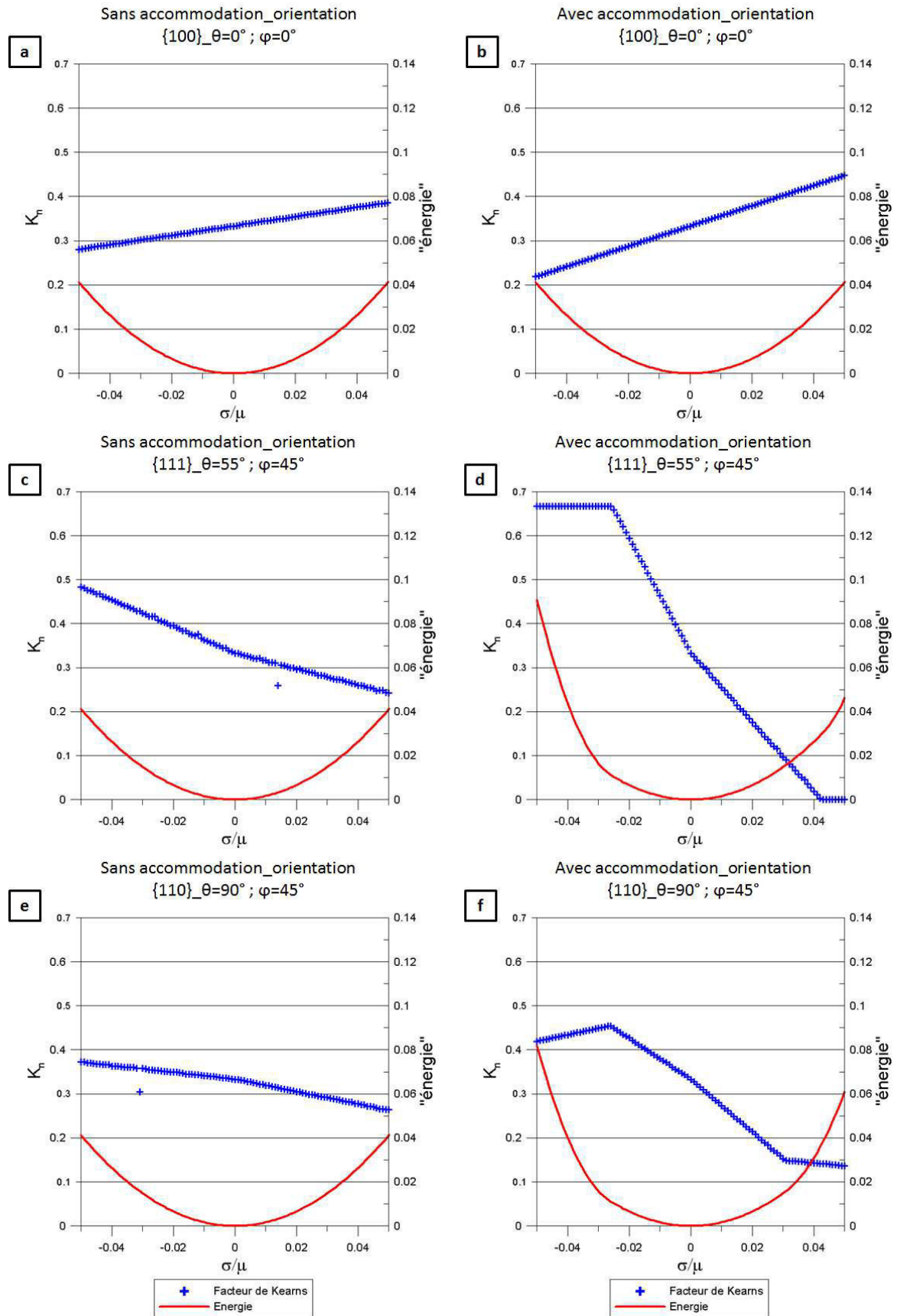


Figure II-11 : Évolution de K_n et de $\|\varepsilon\|^2$ en fonction de σ/μ pour les cas usuels d'orientation de l'ex-grain β

On observe à nouveau dans tous les cas de figure qu'en l'absence de contrainte, le minimum $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2 (= 0)$ est toujours atteint. Par contre, en présence d'une forte contrainte, que ce soit en compression ou en traction, on est loin du minimum. Dans les cas d) et f), le $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ est plus élevé en compression qu'en traction, ce qui diffère des cas sans accommodation, respectivement c) et e) où ils sont similaires en compression et en traction.

Les évolutions des facteurs K_n présentent globalement la même tendance, mais dans les cas avec accommodation d) et f), leur évolution présente plus de fluctuations. Les points instables (points isolés) dans la Figure II-11c) et e) et les fluctuations peuvent être causés par le choix du variant par le système, en effet, plusieurs variants ayant la même énergie peuvent présenter un facteur K_n très différent. Les pentes de l'évolution des facteurs K_n sont bien plus fortes que sans accommodation, ce qui signifie que la sensibilité à la contrainte externe est plus grande.

b. Influence de l'anisotropie de la maille hexagonale

Le cas avec accommodation prend en compte l'environnement de l'ex-grain β considéré, il est donc plus proche de la réalité. Ce dernier cas est maintenant comparé avec celui où l'anisotropie de la maille hexagonale a été prise en compte selon la méthode déjà décrite §II.3.2.b. Comme auparavant, les cartes du facteur K_n en fonction de l'orientation de l'ex-grain β , exprimée au moyen des angles θ et φ , sont représentées sur la Figure II-12. Les diagrammes a) et b) représentent les cas avec accommodation d'Eshelby mais sans prise en compte de l'anisotropie de la maille hexagonale, et correspondent respectivement aux contraintes de compression et de traction. Les diagrammes c) et d) sont leurs analogues avec prise en compte de l'anisotropie hexagonale.

En compression, le maximum est encore observé quand la surface trempée est parallèle à l'un des plans $\{111\}$, cependant dans plusieurs orientations proches, le facteur K_n chute fortement. De plus, les minima observés, sans l'anisotropie, quand la surface trempée est parallèle à l'un des plans $\{100\}$, ne sont plus présents dans le cas anisotrope.

En traction, la variation des facteurs K_n est plus réduite en présence de l'anisotropie. Les maxima sont observés dans les zones correspondant à des minima du cas isotrope.

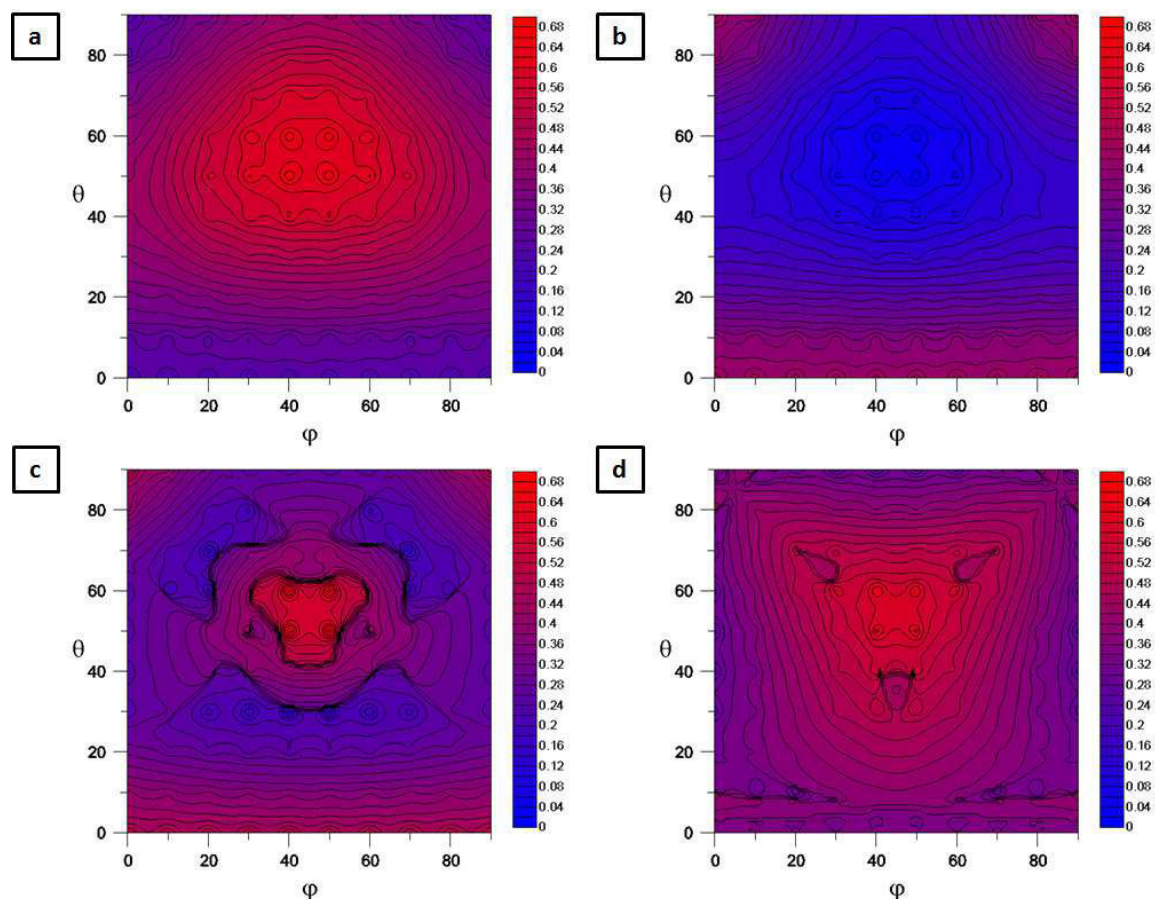


Figure II-12 : Cartes des K_n en fonction des angles θ et ϕ : a) sans l'anisotropie, $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; b) sans l'anisotropie, $\sigma_{//} / \mu = +0,05$; c) avec l'anisotropie, $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; d) avec l'anisotropie, $\sigma_{//} / \mu = +0,05$

Les tendances diffèrent beaucoup. Les différences sont bien physiques ; elles proviennent plus précisément de l'anisotropie mécanique. En effet, dans le cas isotrope, C a deux valeurs propres, κ de multiplicité 1 et μ de multiplicité 5, alors que dans le cas axisymétrique de la structure hexagonale on a C_{44} 2 fois, $C_{11} - C_{12}$ 2 fois et deux autres valeurs propres de multiplicité 1. Les niveaux d'énergie différents dégénèrent vers la même valeur dans le cas isotrope. Concrètement, dans le cas anisotrope, un même cisaillement dans un plan ou un autre conduit à des énergies différentes.

Les évolutions des facteurs K_n et de $\|\epsilon\|^2$ sont étudiées pour les cas usuels d'orientation de l'ex-grain β ; elles sont présentées sur la Figure II-13. Dans la colonne de gauche, nous utilisons la version anisotrope de l'automate mais avec des valeurs numériques isotropes alors que dans la colonne de droite, les constantes d'anisotropie de la phase hexagonale sont implémentées dans l'automate. On notera pour validation que les graphes b, d et f de la Figure II-11 sont identiques aux graphes a, c et e de la Figure II-13.

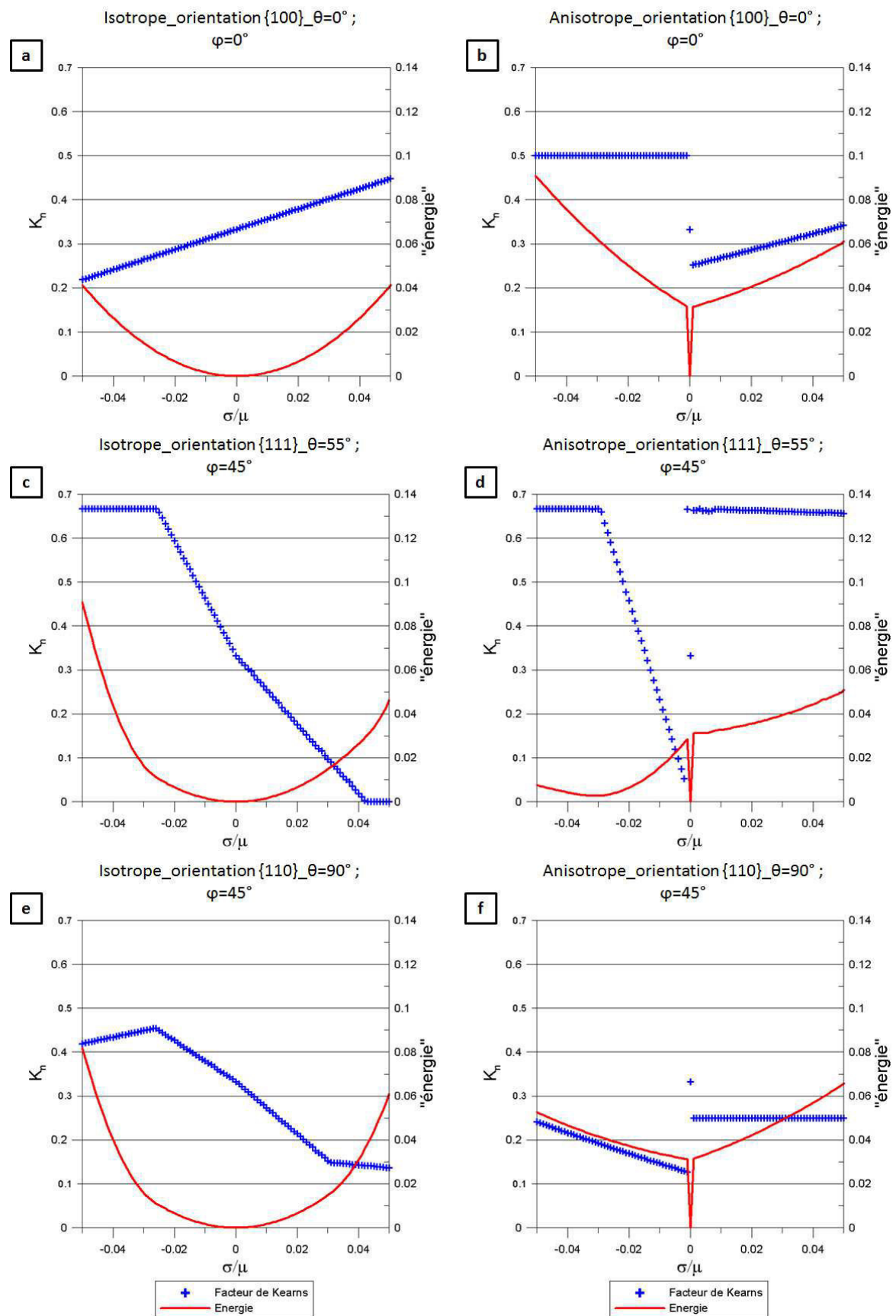


Figure II-13 : Prise en compte de l'anisotropie de la maille hexagonale

Cela valide notre calcul anisotrope étant donné que le premier cas correspond à la version isotrope de l'automate sans les tenseurs d'élasticité hexagonale et le second correspond à la version anisotrope avec les valeurs numériques isotropes.

Encore une fois, dans tous les cas le minimum de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2 (= 0)$ est atteint en l'absence de contrainte. Cependant, les tendances de variation de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ minimale avec la contrainte, diffèrent beaucoup entre les deux cas ; notamment des discontinuités sont présents entre 0^- et 0 et entre 0 et 0^+ , tout comme pour le facteur K_n .

Dans les exemples présentés en c) et d), la valeur la plus grande de $\|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2$ minimisés, pour les contraintes étudiées, est observé en forte compression si l'on considère le cas isotrope, alors qu'il est, dans le cas anisotrope, en forte contrainte de traction.

Quant à la variation du facteur K_n , les tendances sont très différentes. Pour les trois cas d'orientation, une discontinuité est observée entre les contraintes de compression et de traction avec un saut jusqu'à 1/3 pour une contrainte nulle (isorépartition des variants).

Dans le cas isotrope, l'énergie à minimiser s'exprime toujours par la même forme quadratique des composantes du tenseur des déformations. Dans le cas anisotrope, cette forme quadratique dépend de chaque paire de variants jumeaux potentiellement sélectionnées. Dans le modèle, lorsque la contrainte est nulle un arrangement de variants isotrope annule l'énergie même dans le cas anisotrope. Par contre lorsque la contrainte n'est pas nulle, aussi faible soit elle, dans le cas anisotrope, certains variants sont privilégiés et imposent l'énergie calculée avec leurs propres constantes d'élasticité. La discontinuité du facteur de Kearns au voisinage de la contrainte nulle est donc liée au fait que l'expression de l'énergie à minimiser dépend des variants sélectionnés par l'intermédiaire de leur constantes d'élasticité.

c. Assemblage de 4 ex-grains β

Un assemblage de 4 ex-grains β est réalisé afin d'étudier l'influence d'une matrice subissant aussi la transformation $\beta \rightarrow \alpha$, essentiellement quand cette dernière n'a pas la même orientation que l'ex-grain β étudié. Tout d'abord, une comparaison entre l'automate comportant un ex-grain β unique et l'automate contenant 4 ex-grains β tous de la même orientation, est effectuée. Les automates (à un ex-grain et à 4 ex-grains β) intègrent à la fois l'accommodation d'Eshelby et le comportement anisotrope. On note que dans l'automate à 4 ex-grains β , le calcul de la déformation est effectué dans le repère de l'éprouvette non plus dans le repère de l'ex-grain β . Dans le cas où les 4 ex-grains β ont tous une orientation différente, l'énergie est calculée avec la déformation moyenne de tout l'automate, donc il est nécessaire de faire le changement de repère dans un repère commun à tous les 4 ex-grains β , celui de l'éprouvette est le plus commode.

Les cartes des facteurs K_n des deux types d'automates sont présentées sur la Figure II-14. Les cartes a) et c) correspondent à la version d'un ex-grain β unique et les cartes b) et d), à la version de l'assemblage 4 ex-grains β ayant tous la même orientation.

En compression, les cartes de la Figure II-14 a) et b), les distributions des maxima et minima sont relativement semblables. La répartition et la forme des cartes, cependant, diffèrent.

En traction, les cartes de la Figure II-14 c) et d), les tendances sont similaires, dans l'assemblage des 4 ex-grains β , une grande zone présentant de faibles valeurs de l'indice K_n

est observée pour les orientations un des plans $\{111\}$ approximativement parallèle à la surface de l'éprouvette.

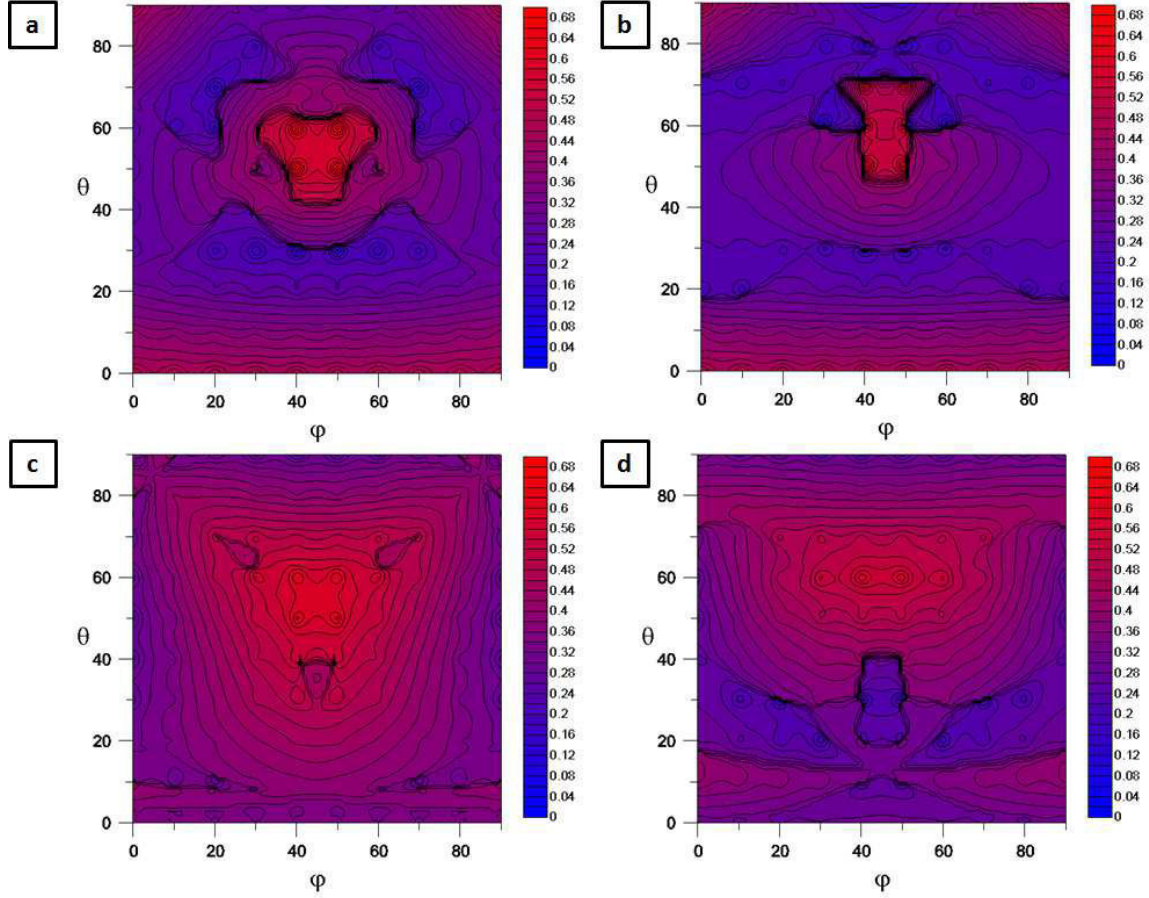


Figure II-14 : Cartes des facteurs K_n en fonction des angles θ et φ : a) un ex-grain β , $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; b) assemblage de 4 ex-grains β , $\sigma_{//} / \mu = -0,05$; c) un ex-grain β , $\sigma_{//} / \mu = +0,05$; d) assemblage de 4 ex-grains β , $\sigma_{//} / \mu = +0,05$

Une comparaison est effectuée pour les orientations usuelles. Elle est présentée sur la Figure II-15. Les résultats de l'automate à 4 ex-grains β , mais tous de même orientation, ne sont pas les mêmes que dans la version à un seul ex-grain β . Ce qui est surprenant *a priori*. La raison est dans les petites erreurs numériques générées par le changement de repère (ex-grain $\beta \rightarrow$ éprouvette) nécessaire pour la gestion de l'agrégat à 4 ex-grains β .

Les deux automates présentent le même comportement d'évolution de l'énergie et les facteurs de Kearns, sauf pour le cas des orientations où un des plans $\{110\}$ est parallèle à la surface de l'éprouvette où, les maxima de l'énergie sont opposés, de même que l'évolution des facteurs K_n .

Les automates prévus pour un ex-grain β ou 4 ex-grains devraient théoriquement donner les mêmes résultats. La seule différence est dans le repère dans lequel l'énergie est calculée. Évidemment, cette dernière, scalaire, ne dépend théoriquement pas du repère mais numériquement oui, elle en dépend à cause des erreurs d'arrondi, essentiellement dans le changement de base avec les produits de matrices réalisés numériquement. Il en résulte que 2 variants qui conduisent théoriquement à la même énergie peuvent présenter 2 énergies différentes qui se classent à l'opposé dans les deux versions d'automate. Il existe des possibilités formellement équivalentes mais qui conduisent à des énergies numériquement légèrement différentes.

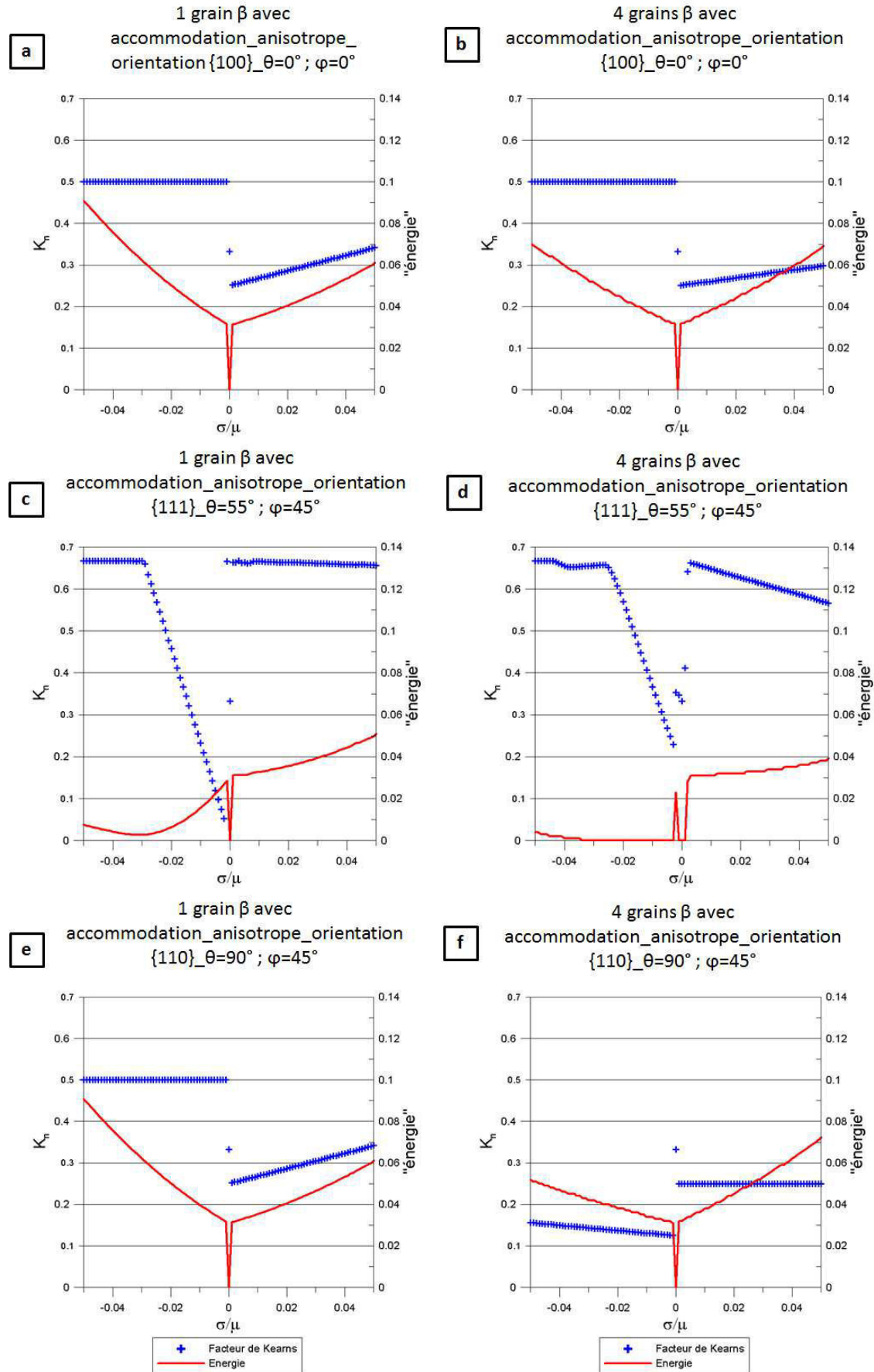


Figure II-15 : Comparaison entre l'automate constitué d'1 seul ex-grain β avec l'assemblage de 4 ex-grains β

Une des solutions pour coller un peu plus à la réalité est de calculer les probabilités d'occurrence de chacun des 12 variants en fonction de l'énergie associées à chacun d'eux. Il suffit alors de tirer aléatoirement le variant sélectionné en respectant la loi de probabilité. Bien entendu, le résultat de l'automate devient stochastique et change à chaque exécution. Il conviendrait donc de répéter un grand nombre de fois l'exécution de l'automate et de calculer les moyennes et les intervalles de confiance des sorties telles que les facteurs $K_n(\sigma)$. Afin d'étudier l'influence de l'orientation parente d'une matrice sur la sélection des variants dans un ex-grain β ayant une orientation différente, l'assemblage des 4 ex-grains β est divisé tel que décrit sur la Figure II-16. Ainsi nous considérons un ex-grain β , le grain central dans le schéma, entouré par des ex-grains β (matrice) dotés d'une même orientation, notée 2.

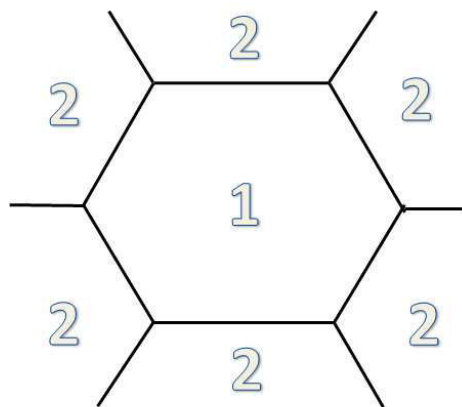


Figure II-16 : Schéma d'un ex-grain β entouré d'une matrice d'orientation différente

Encore une fois, nous étudions les orientations usuelles : $\{100\}$, $\{111\}$ et $\{110\}$. Nous attribuons une orientation au grain central puis une autre à la matrice afin d'observer l'effet des interactions entre grain central et matrice sur la sélection des variants.

Une représentation de l'automate est montrée dans la Figure II-17.

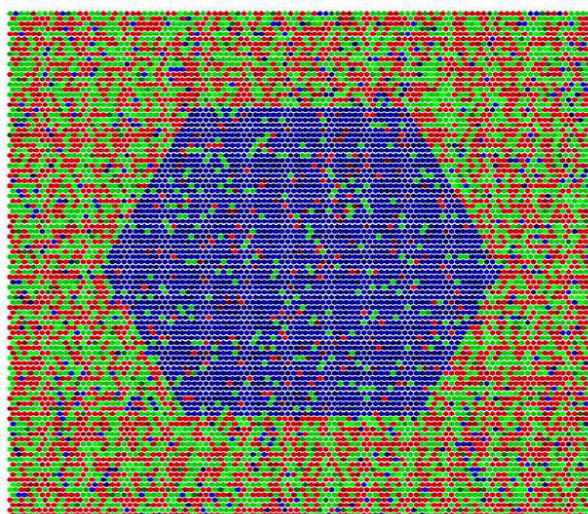


Figure II-17 : Automate cellulaire d'un assemblage de 4 ex-grains β d'orientation : grain 1 $\{110\}$ et grain 2 $\{111\}$; $\sigma = -0,005$ et $K_n = 0,879$

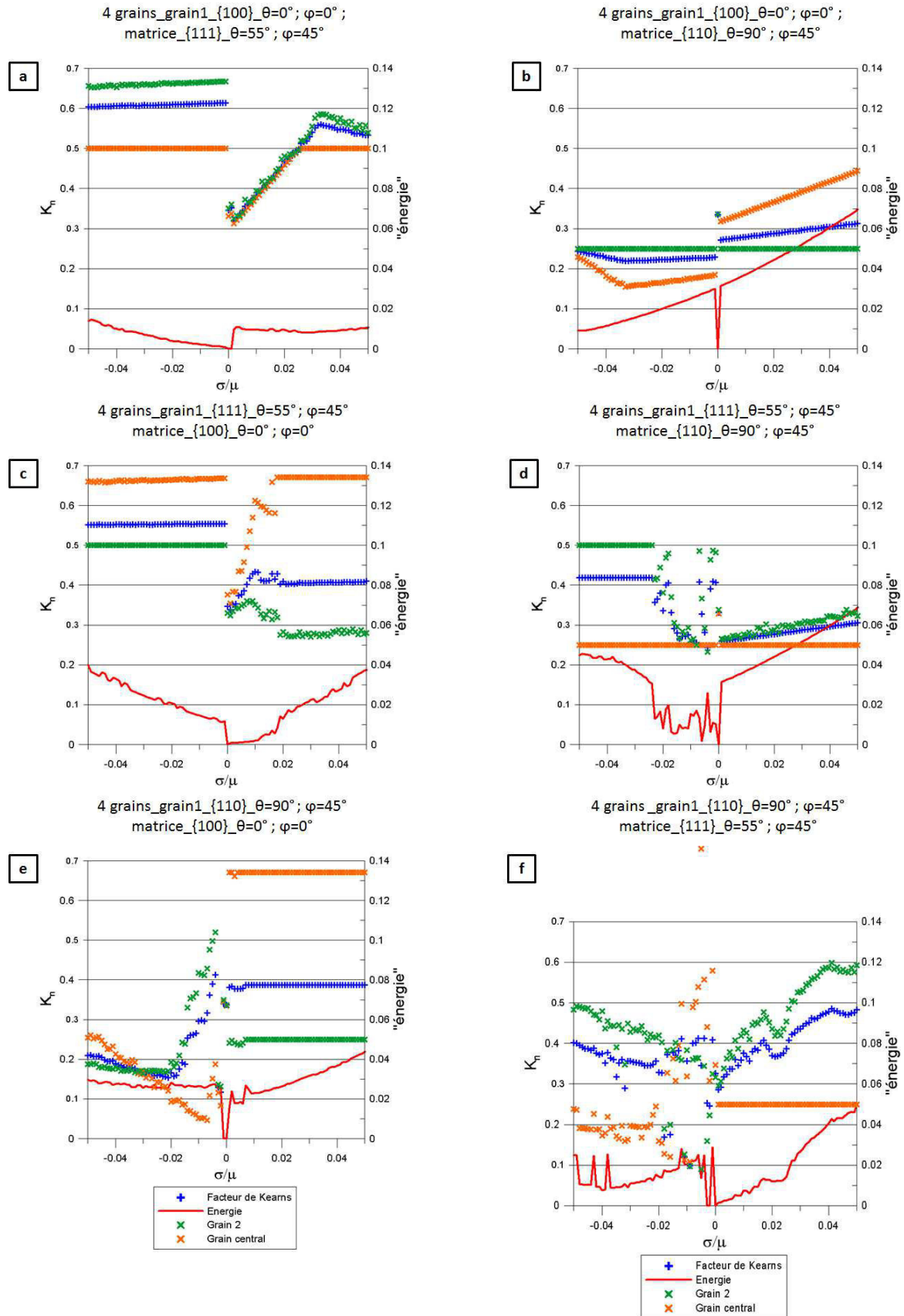


Figure II-18 : Interaction entre un ex-grain β et sa matrice d'orientation différente

Sur la Figure II-18, sont présentées toutes les combinaisons d'interactions entre les 3 orientations usuelles.

Sur la Figure II-18 a) et b), le grain central a pour orientation $\{100\}$ et la matrice a pour orientation respectivement $\{111\}$ et $\{110\}$.

Dans la Figure II-18 c) et d), le grain central est orienté $\{111\}$ et sa matrice, $\{100\}$ et $\{110\}$.

Enfin, sur la Figure II-18 e) et f), le grain central a une orientation de type $\{110\}$ et la matrice, de type $\{100\}$ et $\{111\}$.

L'évolution des facteurs K_n du système est représentée en bleu. En vert, celle de la matrice seule et en orange, celle du grain central seul. L'évolution de l'énergie est toujours représentée en rouge. Étant donné que le grain central représente un quart de la surface totale du système, le facteur K_n se trouve situé au premier quart de l'intervalle séparant la valeur du facteur K_n de la matrice et celui du grain central.

L'évolution de l'énergie fluctue beaucoup et diffère de celle d'un assemblage de 4 ex-grains β présentant la même orientation. L'interaction entre les différentes orientations est complexe. Nous pouvons observer une similitude entre le grain central $\{100\}$ et la matrice $\{111\}$ et vice-versa (Figure II-18 a et c). De même pour le grain central $\{100\}$ et la matrice $\{110\}$ et le cas inverse (Figure II-18 b et e). Cependant l'interaction entre le grain central $\{110\}$ et la matrice $\{111\}$ et son inverse (Figure II-18 d et f) est difficile à interpréter.

Des exemples de calculs avec l'automate à 4 grains ont été effectués à partir des orientations d'ex-grains β observés sur les microstructures expérimentales. Ils sont présentés dans le §IV.3.2.

II.4.3. Discussion des résultats

Tout d'abord, nous retrouvons les résultats analytiques avec l'automate cellulaire. Les cartes du facteur de Kearns, dans le cas de l'automate, présentent des écarts plus étendus, les courbes iso- K_n sont plus dentelées qu'en comparaison avec les calculs analytiques utilisant les pseudo-variants.

Quant à l'approche d'Eshelby, les courbes d'iso-valeurs sont encore plus dentelées par rapport aux calculs avec un β monocristallin. Les tendances d'évolution du facteur K_n et de l'énergie en fonction de l'orientation de l'ex-grain β et en fonction de la nature de la contrainte, en compression ou en traction, sont similaires avec ou sans accommodation d'Eshelby.

Par contre, l'introduction de la matrice d'élasticité axisymétrique à la place du comportement isotrope a un grand impact sur les résultats, essentiellement en traction où les maxima et minima sont inversés sur les cartes des K_n en fonction de l'orientation de l'ex-grain β . Dans le cas de l'anisotropie axisymétrique, la contrainte en traction a un effet opposé à celui observé dans le cas isotrope.

L'interaction entre un ex-grain β et sa matrice de même nature mais avec une orientation différente n'est pas encore bien éclaircie. D'autres études et l'introduction d'autres paramètres permettront d'approfondir ce champ d'étude. L'hypothèse initiale était de minimiser l'énergie de la moyenne des déformations de Bain pour un seul ex-grain β puis cette moyenne pour un agrégat de 4 ex-grains β . Quelle est l'étendue la plus pertinente pour calculer l'énergie associée à la moyenne des déformations de Bain ? Il est évident qu'il n'est pas pertinent de prendre un variant α car l'énergie de Bain ne dépendrait plus de l'éventuelle

sélection de variants... Il est aussi évident que le volume à considérer est plus petit que le lingot entier... Nous avons donc choisi arbitrairement soit l'ex-grain β soit un système de 4 ex-grains β .

II.5. Conclusions sur la modélisation

Un modèle de sélection des variants a été introduit depuis plusieurs années à partir du critère de la minimisation d'énergie élastique du système. Ce modèle a été développé tout d'abord par des calculs analytiques. Afin de faciliter les calculs, des simplifications ont été effectuées, comme par exemple l'introduction des pseudo-variants. Ces calculs analytiques atteignent rapidement leurs limites, c'est pourquoi un outil numérique a été introduit afin d'explorer plus loin le raisonnement. Un automate cellulaire écrit en Fortran 95 a été choisi à cet effet. Les calculs numériques prennent en compte les 12 variants sans simplifications. Cependant, la sélection des variants lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ s'avère très complexe, et plusieurs paramètres physiques doivent être pris en compte. Vu leurs différences, ces modèles, à l'heure actuelle n'ont pas la prétention de prédire la sélection des variants, mais ont pour vocation, à terme, de le faire. Ces présents modèles doivent être confrontés avec les résultats expérimentaux pour évaluer l'impact des différentes implémentations effectuées et pour être validés. Cette comparaison est effectuée dans le chapitre IV.

Une des conclusions majeures est l'extrême sensibilité de la sélection des variants et même des facteurs de Kearns au détail des calculs, notamment à l'élasticité anisotrope. C'est probablement l'une des origines :

- des difficultés à appréhender ce comportement ;
- de la nécessité de manipulations soignées (caractérisation détaillée des grains adjacents par exemple) ;
- de la possibilité de trouver de nombreux modèles qui expliquent les sélections.

Références :

- [1] S. Wang, C. Schuman, L. Bao, J. S. Lecomte, Y. Zhang, J. M. Raulot, M. J. Philippe, X. Zhao, and C. Esling, "Variant selection criterion for twin variants in titanium alloys deformed by rolling," *Acta Mater.*, vol. 60, no. 9, pp. 3912–3919, May 2012.
- [2] M. Salib, J. Teixeira, L. Germain, E. Lamielle, N. Gey, and E. Aeby-Gautier, "Influence of transformation temperature on microtexture formation associated with α precipitation at β grain boundaries in a β metastable titanium alloy," *Acta Mater.*, vol. 61, no. 10, pp. 3758–3768, Jun. 2013.
- [3] S. Lubin, "Etude des mécanisme de la transformation de phase bainitique dans les aciers bas carbone," Thèse de l'Ecole des Mines de Paris, 2009.
- [4] P. M. Kelly, "Crystallography of lath martensite in steels," *JIM*, vol. 33, no. 3, pp. 235–242, 1992.
- [5] A. Lambert-Perlade, "Rupture par clivage de microstructures d'aciers bainitiques obtenus en conditions de soudage," Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2001.
- [6] A. F. Gourgues, "Microstructure induced by the bainitic transformation in steels during welding: effect on the resistance to cleavage cracking," *Thermec 2003, Mater. Sci. Forum*, vol. 426–432, pp. 3629–3634, 2003.
- [7] M. Humbert, B. Gardiola, C. Esling, G. Flemming, and K. E. Hensger, "Modelling of the variant selection mechanism in the phase transformation of HSLA steel produced by compact strip production," *Acta Mater.*, vol. 50, no. 7, pp. 1741–1747, Apr. 2002.
- [8] M. Humbert and N. Gey, "Elasticity-based model of the variant selection observed in the β to α phase transformation of a Zircalloy-4 sample," *Acta Mater.*, vol. 51, no. 16, pp. 4783–4790, Sep. 2003.
- [9] T. Karthikeyan, A. Dasgupta, R. Khatirkar, S. Saroja, I. Samajdar, and M. Vijayalakshmi, "Effect of cooling rate on transformation texture and variant selection during $\beta \rightarrow \alpha$ transformation in Ti–5Ta–1.8Nb alloy," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 528, no. 2, pp. 549–558, Dec. 2010.
- [10] R. Shi and Y. Wang, "Variant selection during α precipitation in Ti–6Al–4V under the influence of local stress – A simulation study," *Acta Mater.*, vol. 61, no. 16, pp. 6006–6024, Sep. 2013.
- [11] P. Barbéris, F. Montheillet, and C. Chauvy, "Variant Selection in Zr Alloys: How Many Variants Generated from one Beta Grain?," *Solid State Phenom.*, vol. 105, pp. 133–138, 2005.
- [12] P. Barberis, MT Tran, F. Montheillet, D. Piot, A. Gaillac. "Characterising quenched microstructures in relation to processing," in *The 17th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*, 2014.

- [13] W. G. Burgers, “On the process of transition of the cubic-body-centered modification into the hexagonal-close-packed modification of zirconium,” *Phys. I*, 1933.
- [14] J. . Kearns, “On the relationship among P texture factors for the principal planes of zirconium, hafnium and titanium alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 299, no. 2, pp. 171–174, Nov. 2001.
- [15] J. J. Kearns, “Thermal expansion and preferred orientation in Zircaloy,” in *WAPD-TM-473*, 1965.
- [16] F. Montheillet and A. Aoufi, “Modélisation de la transformation beta-alpha et de la sélection des variants à l’aide d’un automate cellulaire,” Rapport de contrat, Saint-Etienne, 2005.
- [17] A. Cabrera Salcedo, “Modélisation de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ et de la sélection des variants dans les alliages de zirconium à l’aide d’un automate cellulaire,” Master ENSMSE, 2007.
- [18] U. F. Kocks, C. N. Tomé, and H.-R. Wenk, *Texture and Anisotropy*. Cambridge University Press, 2000, 676 pages.

CHAPITRE 3

Chapitre III : Techniques et dispositifs expérimentaux

Les produits des alliages en zirconium subissent à plusieurs reprises des étapes de trempe au cours de la chaîne de fabrication en partant de la fusion de lingot jusqu'à la trempe finale de certains produits.

Les alliages Zy-4 ont été obtenus par le procédé de fusion à l'arc (VAR : Vacuum Arc Remelting) qui consiste en une succession de fusions d'éponges de zirconium et de ses additifs. Le lingot découlant de ce procédé a été disposé à la verticale, de ce fait on distingue la tête du lingot (partie située vers le haut) et le pied du lingot (partie située vers le sol). Le lingot a subi à son tour une série de forgeages entre 750 °C et 900 °C puis une trempe à l'eau pendant laquelle la transition β - α a lieu lors de la descente en température depuis 1050 °C. Cette trempe a pour but d'effacer partiellement la texture provenant du forgeage, d'homogénéiser la microstructure et les éléments d'addition. La vitesse moyenne de trempe est d'environ 5 °C.s⁻¹ en peau, 2 °C.s⁻¹ à mi-rayon et 1°C.s⁻¹ à cœur. Ce gradient thermique ainsi que la teneur de certaines impuretés volatiles comme le chlore, peuvent varier axialement et peuvent avoir une influence sur la microstructure de trempe. La microstructure de trempe est constituée de lamelles α disposées, soit en platelets parallèles, soit en vannerie au sein des ex-grains β , dont la taille varie entre quelques centaines de micromètres et quelques millimètres. La proportion des caractères morphologiques des lamelles varie et les paramètres responsables de ces différences ne sont pas encore très connus. La vitesse de trempe détermine l'épaisseur des lamelles [1] ainsi que la taille des SPP (Second Phase Particle) [2]. Outre les aspects morphologiques des grains, leur orientation peut varier. Ainsi une étude cristallographique localisée a été réalisée afin d'apporter plus d'informations sur les évolutions microstructurales.

Les différentes techniques et méthodes utilisées pour caractériser les microstructures de trempe du Zy-4 sont présentées dans ce chapitre en commençant par les traitements thermiques ou thermomécaniques pouvant influencer ces dernières. Puis sont décrites les techniques utilisées pour quantifier l'aspect morphologique des grains. Enfin une méthodologie d'analyse cristallographique a été mise en place et des expériences ont été menées pour mettre en évidence la sélection des variants.

III.1. Traitements thermiques

L'étude de la microstructure de trempe des alliages de zirconium vise à comprendre les évolutions morphologiques et cristallographiques des grains α et β . Les différents traitements

thermiques et thermomécaniques effectués au cours de cette thèse sont détaillés dans ce paragraphe.

Deux tronçons de 230 mm de hauteur environ ont été prélevés en tête d'une billette de Zy-4, l'un provenant d'une billette trempée (T) et l'autre d'une billette brute de forges, c'est-à-dire qu'elle n'a pas été amenée dans le domaine β (B). Les tronçons ont été sciés en rondelles dans la direction transverse de la billette. Les deux rondelles T et B ont ensuite été découpées en quarts (Figure III-1).

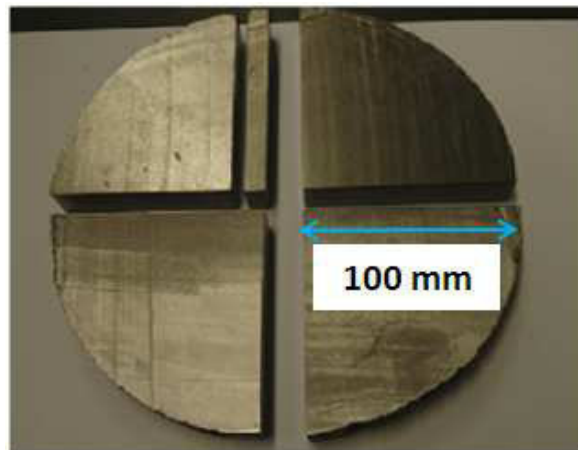


Figure III-1 : Découpe d'une rondelle prélevée dans une billette de Zy-4

Les traitements thermiques sont faits généralement dans un four tubulaire à rayonnement. Cependant pour effectuer des chauffages plus rapides ou des trempes sous contrainte on a utilisé un four à induction et donc la géométrie des échantillons doit être adaptée à la machine. Dans un premier temps, on décrira les expériences menées afin de déterminer une loi de croissance des grains β . Dans un deuxième temps, seront décrits les différents paramètres mis en jeu pour observer les différences morphologiques des colonies α . Et enfin, les traitements thermiques dédiés à l'étude de la sélection des variants seront présentés.

III.1.1. Cinétique de croissance des grains β

Un phénomène a été observé lors des contrôles microstructuraux par la société CÉZUS : quand une trempe à l'air effectuée sur une billette est suivie d'un chauffage jusqu'à dans le domaine β , les ex-grains β croissent de façon excessive. Dans le cas inverse, c'est-à-dire une trempe à l'eau suivie d'un chauffage jusqu'à dans le domaine β , il n'y a pas de grossissement anormal. Ce phénomène a été reproduit en laboratoire. Un chauffage plus rapide devrait limiter cette croissance exagérée car il favoriserait plus la germination que la croissance. Des barrettes de $10 \times 20 \times 100 \text{ mm}^3$ sont usinées à partir des quarts de la billette. Chaque barrette a subi un traitement thermique. Un thermocouple est mis en place à 20 mm d'une surface de la barrette afin d'estimer les vitesses de chauffe et de trempe de ces échantillons.

Pour évaluer la vitesse de croissance des grains β , les barrettes ont été chauffées jusque dans le domaine β à 1050 °C et maintenues durant 0 à 120 min.

a. Traitements thermiques avec un maintien en β

La cinétique de croissance des grains β , après les étapes de forgeage, dans les alliages de zirconium n'est pas encore très connue. Deux états de départ de l'alliage Zy-4 ont été fournis pour cette étude : un état brut de forge et l'état trempé industriellement après forgeage. La détermination d'une loi de croissance de type loi puissance sous la forme : $d^n - d_0^n = kt$ a été effectuée sur ces deux types de matériau pour mettre en évidence l'effet du temps de maintien. Pour ce faire six barrettes issues de la billette brute de forge et de la billette trempée ont subi le traitement thermique schématisé dans la Figure III-2 avec six temps de maintien différents.

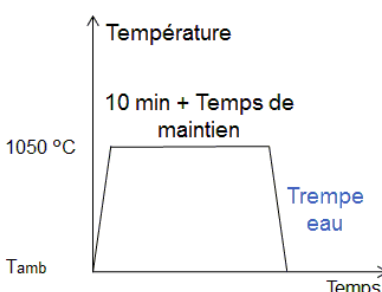
État de départ	Traitement thermique	Temps de maintien (min)
Billette brute de forge		0, 15, 30, 45, 60 et 120
Billette trempée après forgeage		

Figure III-2 : Détermination de la loi de croissance des grains β avec le temps de maintien dans le domaine β

Dans tous les cas, une dizaine de minutes est ajoutée au temps de maintien, temps estimé nécessaire pour homogénéiser la température dans l'échantillon.

b. Double trempe

Afin de mettre en évidence le phénomène associé à la double trempe, quatre barrettes issues de la billette brute de forge ont été usinées. Les échantillons sont nommés de A à D. Chacun a subi un traitement thermique, deux d'entre eux ont été trempés une seule fois à des vitesses différentes et les deux autres ont subi des doubles trempes de configuration différente (Figure III-3). La première configuration (Figure III-3c) consiste à refroidir l'échantillon une première fois lentement puis à remonter dans le domaine β pour le refroidir rapidement. La deuxième configuration (Figure III-3d) est l'inverse de la première, c'est-à-dire que le premier

refroidissement est rapide et le second lent. Le refroidissement lent est un refroidissement à l'air libre dont la vitesse est estimée à 1°C.s^{-1} dans la gamme de températures de 1050°C à 800°C . Quant au refroidissement rapide, c'est une trempe à l'eau avec une estimation, toujours dans la même gamme de température, de $27^{\circ}\text{C.s}^{-1}$.

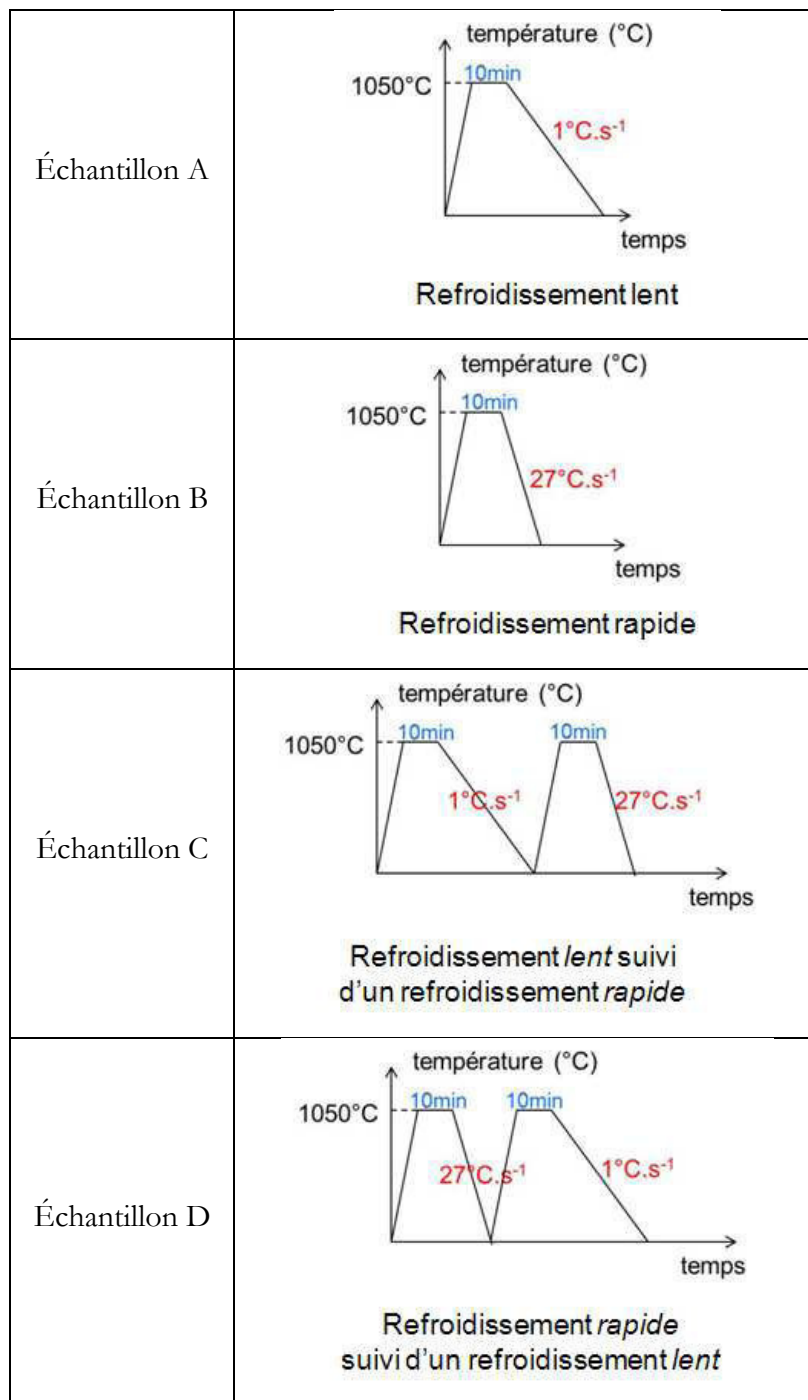


Figure III-3 : Mise en évidence de l'effet de la double trempe

c. Chauffage rapide dans le four à induction

La seule différence microstructurale entre une première trempe lente ou rapide est la taille des lamelles α . Dans le premier cas, les lamelles sont relativement épaisses alors que le deuxième cas présente une morphologie en fines lamelles donc plus nombreuses. Un chauffage lent favoriserait la croissance de ces lamelles et lors de la transformation $\alpha \rightarrow \beta$, les grains β grossiraient proportionnellement à la taille des lamelles à basse température. En revanche, si le chauffage est assez rapide, les sites de germination apparaissent rapidement lors de la transformation de phases et donc la croissance qui s'ensuit est limitée par le grand nombre de nouveaux grains β . Dans un four à rayonnement, la montée en température est limitée à $2\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$ dans la gamme de température de la transformation de phases c'est-à-dire entre $800\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$. Pour augmenter la vitesse du chauffage, des échantillons de forme cylindrique, de diamètre 10 mm et de hauteur 15 mm ont été chauffés avec un four à induction. Un thermocouple est placé à 2 mm de la surface des échantillons pour asservir le four et un pyromètre à infrarouge du modèle Modline 5 a été mis en place pour évaluer la température en surface (Figure III-4).

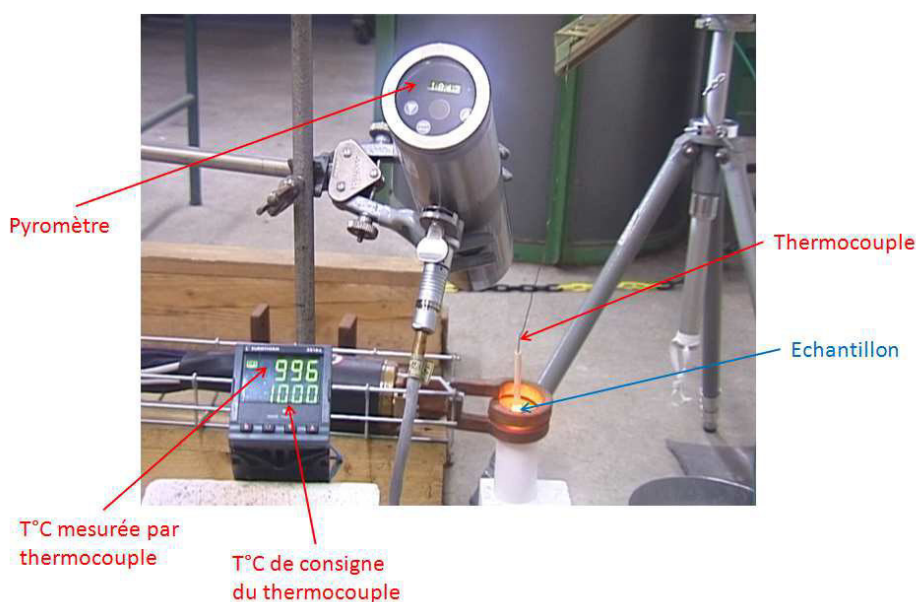


Figure III-4 : Dispositif du four à induction pour le chauffage rapide

La gamme de température d'utilisation du pyromètre est comprise entre $700\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $1800\text{ }^{\circ}\text{C}$. La vitesse de montée en température avec le four à induction est estimée à environ $12\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$ soit six fois plus rapide que dans un four tubulaire. Les temps de maintien en β sont de 10, 20, 30 et 45 minutes. Après le maintien, la trempe est effectuée à l'aide d'un flux d'argon. On note que le Zr est paramagnétique et donc il est chauffé de la surface jusqu'au cœur de l'échantillon, et de ce fait la température de référence sera celle donnée par le thermocouple.

Après le traitement thermique, les échantillons sont découpés selon leur section transversale tous les 3 mm pour une estimation de la taille des grains β .

III.1.2. Quantification des caractères vannerie/platelets parallèles

Un certain nombre d'images optiques a été effectué par la société CÉZUS sur des échantillons ayant subi diverses conditions expérimentales. Un traitement d'image a été effectué sur ces images afin de quantifier les caractères vannerie/platelets parallèles (V/PP). Ce traitement d'image sera plus détaillé dans le paragraphe III.2.3. c. Tout d'abord, une différence microstructurale notable est observée entre la tête et le pied de la billette ; en effet on observe une microstructure plutôt en vannerie en tête alors que les lamelles sont arrangées en platelets parallèles au pied de la billette. Deuxièmement, la vitesse de trempe estimée le long du rayon de la billette diminue de la peau jusqu'au cœur. Pour étudier cette hétérogénéité microstructurale, des échantillons prélevés à différents rayons de la billette ont été observés afin de quantifier les caractères V/PP. Cinq différentes vitesses de refroidissement fonction de la profondeur dans l'échantillon ont été estimées à l'aide d'un modèle qui prend en compte à la fois la vitesse de transformation de phases qui varie selon les alliages et la diffusion dans le matériau [3]. Ce modèle est développé au sein de la société CÉZUS et les images optiques pour l'étude nous ont été fournies par la société. Les cinq vitesses calculées en fonction de la profondeur dans l'échantillon et qui sont étudiées dans cette thèse sont : $12,8\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; $17\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; $30,4\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$; $46\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$ et $103\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$.

Certains paramètres de réglage du microscope lors de l'observation pourraient fausser la quantification des caractères V/PP tels que les angles de polarisation et le grossissement. Les images optiques des microstructures de trempe révèlent mieux les différentes colonies de lamelles si elles sont effectuées en lumière polarisée. Selon l'angle de polarisation certaines colonies sont visibles alors que d'autres non et cela peut avoir un impact sur la quantification morphologique. Plusieurs plages ont été observées deux fois mais avec deux angles de polarisation différents pour voir son influence.

Par ailleurs, le choix du grandissement lors de l'acquisition de l'image a un fort impact sur la caractérisation de la microstructure de trempe. Plus une trempe est forte, plus les lamelles sont fines et donc le grandissement doit être d'autant plus grand, alors qu'un refroidissement lent conduit à une microstructure plus grossière, par conséquent, un petit grossissement serait plus adapté. Une comparaison a été effectuée sur la quantification morphologique entre une image prise avec un faible grandissement et une dizaine de micrographies prises sur la même plage mais à plus fort grandissement.

III.1.3. Sélection des variants

L'étude de la sélection des variants proposée dans cette thèse est une étude locale. Elle sera menée à travers des analyses EBSD présentées par la suite dans le paragraphe III.3. Plusieurs

paramètres pouvant influencer la sélection des variants ont été cités dans la littérature. Parmi ceux cités, nous étudions d'une part l'influence de la vitesse de trempe et d'autre part, l'effet d'une contrainte appliquée lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$.

a. Influence de la vitesse de trempe

Des échantillons de 1 cm³ ont été prélevés dans une billette T à mi-rayon de celle-ci. Plusieurs analyses EBSD ont été effectuées sur cet état noté « état initial ». Ces échantillons ont subi par la suite un traitement thermique effectué dans un four tubulaire puis ont été trempés. La trempe est soit une trempe « rapide » (trempe à l'eau) estimée à 27 °C.s⁻¹ soit une trempe « lente » (trempe à l'air) estimée à 1 °C.s⁻¹. Les vitesses de trempe ont été estimées sur des échantillons de 20×10×100 mm³ sans protection, alors que les échantillons décrits ci-dessus, lors du traitement thermique, ont été mis sous ampoule pour protéger l'échantillon de l'oxydation dans le domaine β . Les vitesses sont donc surestimées mais elles restent suffisamment différentes pour faire la distinction entre une trempe « lente » et « rapide ».

b. Effet d'une contrainte appliquée lors du refroidissement

Pour étudier l'effet d'une contrainte appliquée en traction ou en compression pendant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$, des éprouvettes axisymétriques ont été usinées pour pouvoir être montées dans un four à induction. Le choix du four à induction s'est imposé pour son arrêt instantané de chauffage, ce qui est nécessaire car il n'est pas souhaité de déformer dans le domaine β par fluage sous l'effet de la contrainte imposée. Le dispositif pour contrôler la température est le même que celui présenté dans le paragraphe III.1.1. c. L'expérience consiste à chauffer l'éprouvette jusqu'au domaine β (~1000 °C) puis à la refroidir en appliquant une contrainte de l'ordre de grandeur de la limite d'élasticité à 1000 °C [4]. Les éprouvettes ont une section utile de 10 mm de diamètre et 30 mm de hauteur. L'éprouvette est installée sur un système qui permet de mettre celle-ci sous charge lors du refroidissement. La contrainte appliquée lors de la trempe est d'environ 3,9 MPa pour des essais en traction et 2,5 MPa pour les essais en compression. Notez que ces contraintes sont très faibles comparées aux valeurs utilisées dans les calculs ($\sigma/\mu = \pm 0.05$). Enfin, la trempe s'effectue avec un flux d'argon.

III.2. Analyse d'image

Le Zy-4 présente après les étapes de forgeage une microstructure complètement en lamelles α qui ont crû au sein d'ex-grains β (Figure III-5). La taille des ex-grains β varie entre quelque

centaines de μm^2 et plus d'un mm^2 . Quant à l'épaisseur des lamelles, elle varie en fonction de la vitesse de trempe; dans les différents cas étudiés, elle est comprise entre 1 μm et 15 μm .

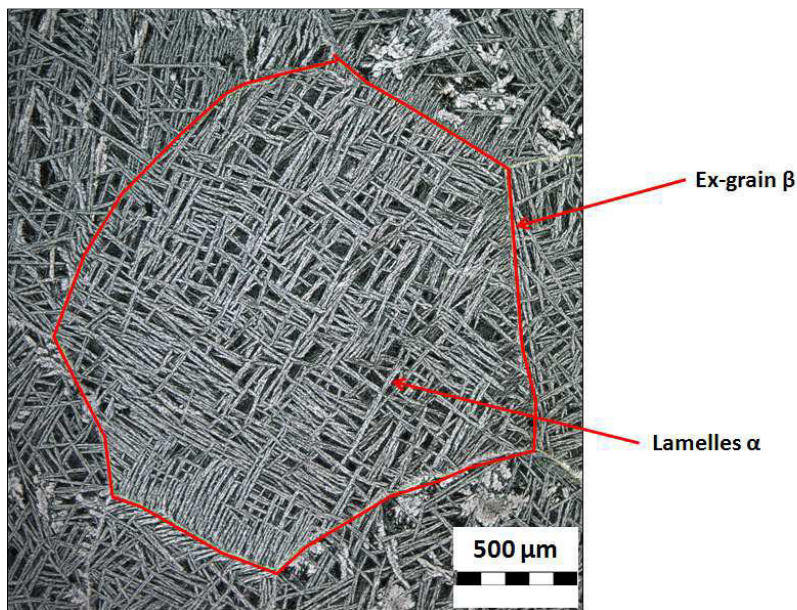


Figure III-5 : Micrographie optique d'une structure de trempe du Zy-4

Les lamelles α peuvent se présenter sous deux morphologies. Soit les lamelles s'entrecroisent pour former une structure en vannierie (V) (Figure III-6a), soit elles sont localement alignées entre elles, ce sont alors des platelets parallèles (PP) (Figure III-6b). Lors de l'étape de filage qui suit, les structures en vannierie se fragmentent aisément (Figure III-7a) alors que les billettes présentant un fort caractère de platelets parallèles forment, après le filage, des structures appelées des structures en « duplex » (Figure III-7b). Ces dernières engendrent des irrégularités de surface, néfastes pour la fabrication des tubes. L'objectif des analyses d'images optiques est de définir d'une part, les cinétiques de croissance de la taille des grains β ainsi que de comprendre l'origine des changements de cinétique de celle-ci. D'autre part, une caractérisation statistique a été établie pour pouvoir classer les microstructures de trempe en fonction de la morphologie des lamelles α . L'idée est de réaliser un traitement d'image sur des photos prises au microscope optique en lumière polarisée. Ce traitement consiste alors à délimiter des joints entre colonies de lamelles afin de donner par la suite une distribution de taille de ces colonies. Enfin, à partir de ces distributions, les microstructures sont classées en fonction de leurs caractères V/PP.

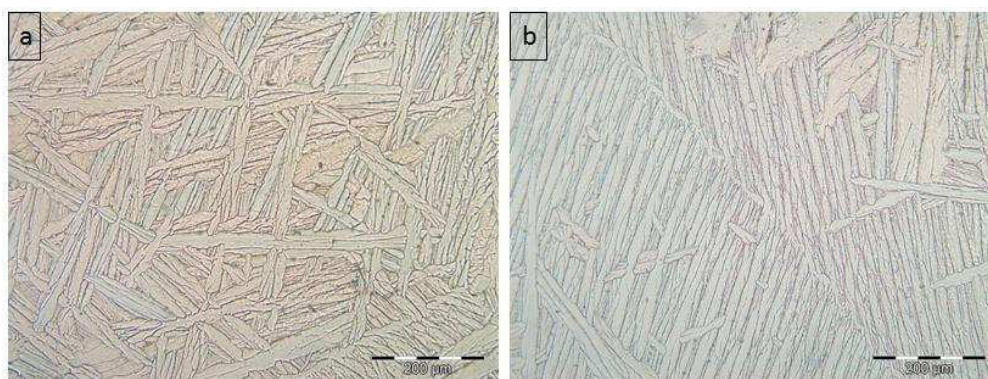


Figure III-6 : Morphologies des lamelles après trempe: a) vannerie (V) ; b) platelets parallèles (PP)

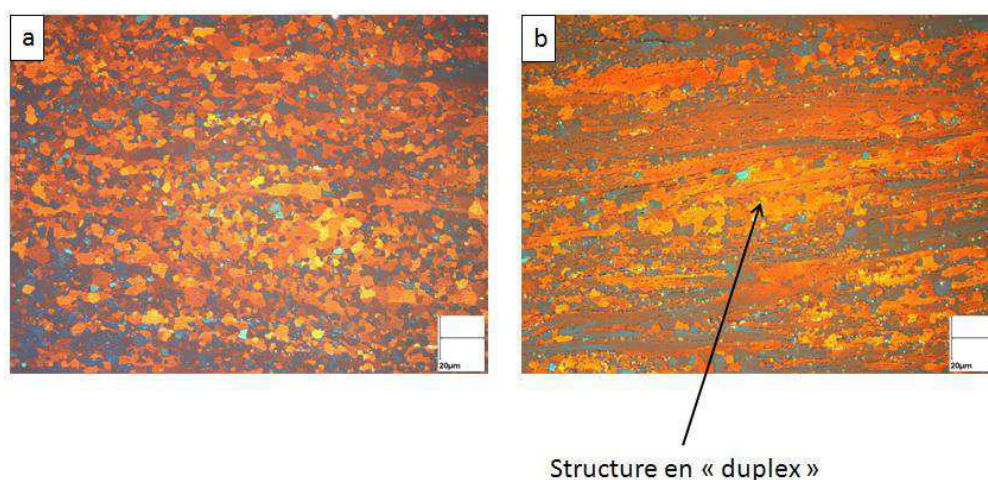


Figure III-7 : Structures après filage a) issue d'une structure majoritairement en V ; b) issue d'une structure majoritairement en PP (données de CÉZUS)

III.2.1. Préparation métallographique des échantillons

La géométrie des éprouvettes et leur préparation métallographique diffèrent selon l'étude visée. Pour déterminer la taille des ex-grains β , trois éprouvettes de dimensions $15 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ ont été découpées le long de chaque barrette préalablement traitée thermiquement. Les échantillons subissent un polissage mécanique avec des papiers abrasifs en SiC jusqu'au grade P2500 ($9 \mu\text{m}$) suivi d'un polissage électrolytique. La solution utilisée pour le polissage électrolytique est un mélange contenant 80 %vol d'acide acétique et 20 %vol d'acide perchlorique, la tension imposée est de 30 V pour une durée de 20 s.

Quant aux micrographies pour la quantification des colonies α , elles ont été effectuées à CÉZUS (Ugine). Les échantillons ont été polis mécaniquement puis avec la silice colloïdale (OPS) pour les observations en lumière blanche. Pour les observations en lumière polarisée, une oxydation anodique est nécessaire. Les micrographies sont prises avec des grossissements allant de $\times 25$ à $\times 200$, suivant l'épaisseur des lamelles qui est fonction de la

vitesse de trempe. Une dizaine d'images sont effectuées pour chaque condition donnée (échantillon, grandissement, orientation du polariseur).

III.2.2. Quantification de la taille des ex-grains β

Le logiciel d'analyse d'image ne permet pas de différencier les joints entre lamelles α et les ex-joints β . Et la méthode des intercepts est adaptée pour des grains équiaxes et sans texture morphologique. Les grains β après un temps de maintien trop long ne respectent plus ces conditions. C'est pourquoi la méthode adoptée pour estimer au mieux la taille des grains β consiste à dessiner manuellement les ex-joints β . Toutes les statistiques se font sur une surface d'observation de $20 \times 10 \text{ mm}^2$ sur trois échantillons et seuls les grains entiers sont pris en compte, c'est-à-dire que les grains sur les bords ne sont pas comptabilisés. De ce fait, les grains les plus gros étant souvent coupés aux bords de l'image, sont parfois défavorisés dans la statistique retenue. Un exemple de la détermination de la taille des ex-grains β est présenté sur la Figure III-8.

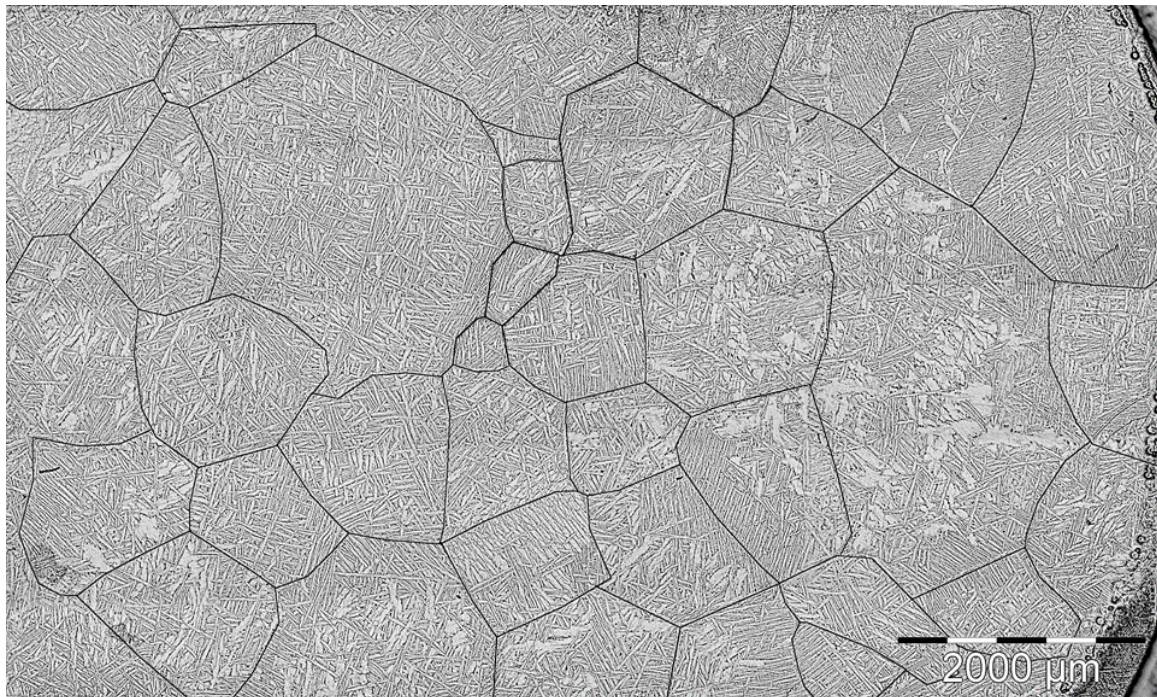


Figure III-8 : Détermination de la taille des ex-grains β

À partir du masque des joints de grains, le logiciel d'analyse d'image AnalysisPro sort tous les renseignements nécessaires sur les grains β . Les informations retenues ici sont le diamètre moyen des grains β et leur surface respective, elles permettent par la suite de déterminer le diamètre moyen pondéré par l'aire de chacun des états, soit :

$$\langle D \rangle = \frac{\sum_1^n \overline{d_n} \times S_n}{\sum S_n} \quad (\text{III-1})$$

où

$\langle D \rangle$: le diamètre moyen pondéré par l'aire

$\overline{d_n}$: le diamètre moyen du grain n

S_n : l'aire du grain n

III.2.3. Quantification des colonies α

Un grain β peut engendrer 12 variants α distincts. La désorientation entre deux variants peut être caractérisée par un angle θ_{\min} et l'axe de rotation correspondant. Les symétries conduisent à une réduction de ces angles θ_{\min} à 5 valeurs différentes. Une analyse EBSD permet d'obtenir les orientations cristallographiques de chaque grain. Il est ainsi facile d'obtenir une cartographie des joints de grains. Le principe de l'analyse EBSD et la description de chacune des cartographies seront présentés dans un paragraphe ultérieur. Sur la Figure III-9a, le code de couleur représente pour chaque pixel l'orientation du grain α correspondant. Les joints en noirs sur la Figure III-9b représentent les ex-joints de grains β et en vert, les joints dont la désorientation entre pixels voisins correspond aux θ_{\min} ($\pm 2^\circ$) possibles entre deux variants. Pour cette étude nous ne ferons pas la distinction entre les pixels noirs et verts, ils représentent dans les deux cas des joints de grains. Ces joints de grains détectés par la méthode EBSD seront la référence à laquelle il faudra se fier pour toute validation du traitement d'image qui suit. L'analyse EBSD ne peut être utilisée comme technique de quantification de caractère V/PP étant donné que l'acquisition d'une plage suffisamment grande pour être statistique, serait bien trop longue.

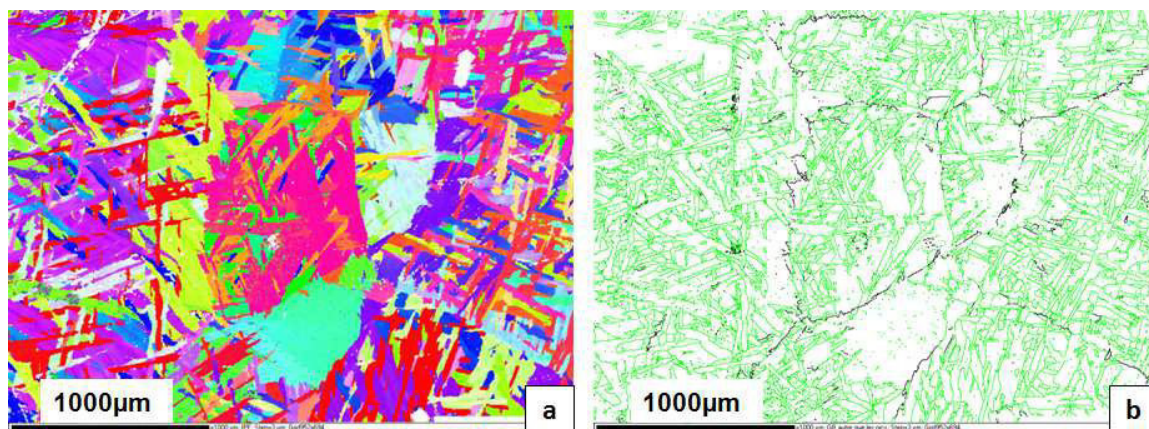


Figure III-9 : Cartographies issues d'une analyse EBSD : a) cartographie coloriée en IPF (Inverse Pole Figure); b) cartographie des joints de grains de la même plage

La quantification doit être effectuée à plus grande échelle, un traitement d'image a donc été mis en place pour des micrographies optiques.

a. Imagerie optique des structures de Zy-4 trempé

Les images prises en optique sont issues d'une lumière blanche réfléchiée sur l'échantillon. En ajoutant un polariseur (avec analyseur), on filtre une seule direction des ondes lumineuses. Les échantillons sont attaqués par voie électrolytique ou chimique et selon leur orientation l'attaque diffère. La direction de propagation étant la même, seule la biréfringence du matériau due à l'attaque permet de différencier les orientations des lamelles. Cette différenciation n'est que qualitative et est parfois trompeuse. La fonction « détection des joints de grains » des logiciels d'analyse d'image n'est pas capable de différencier les joints entre lamelles de la même colonie de ceux des différentes colonies. De plus, tous les joints ne sont pas détectés car tout dépend de la teinte et de la brillance de l'image. En changeant la polarisation, il est possible d'apercevoir des colonies de lamelles qui n'étaient pas visibles avec une autre polarisation. Les flèches noires de la Figure III-10a montrent l'absence de colonies α qui apparaissent avec un autre angle de polarisation : flèches rouges de la Figure III-10b. La plus grande difficulté en optique est donc de différencier numériquement les teintes des couleurs très proches tout en éliminant les joints des lamelles d'une même colonie.

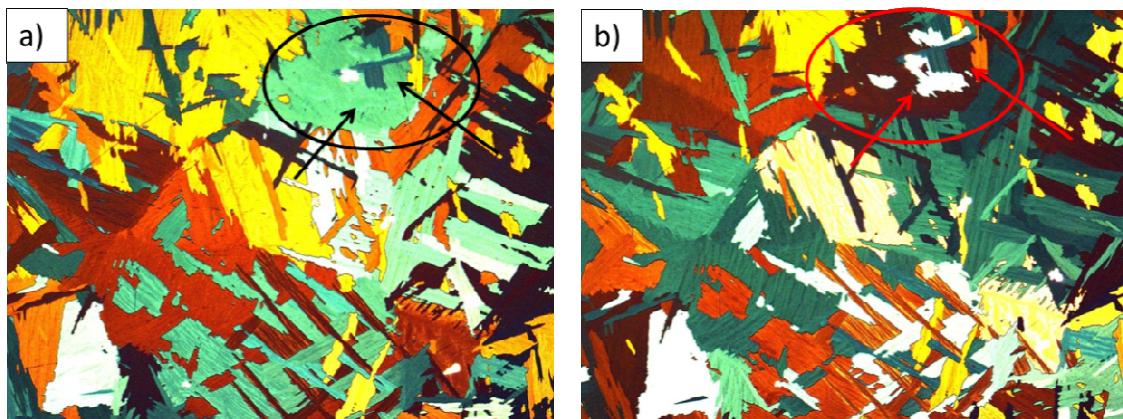


Figure III-10: a) image optique prise avec un certain angle de polarisation ; b) la même image avec un autre angle de polarisation.

Les images sont sauvegardées en format bmp ou jpeg, ce sont des images dites matricielles. Cela signifie que chaque image est composée d'une matrice de points renseignant d'une part, les coordonnées des pixels et d'autre part des informations sur la couleur. Le codage de la couleur peut se faire de diverses manières (RGB, CYMK, etc.). Dans le cas présent, le codage des couleurs se fait en RGB (Red Green Blue). Il est à noter que pour les images en jpeg, il y a une perte d'information due à la compression et cette compression/perte varie selon les logiciels utilisés lors de l'acquisition de l'image.

b. Indice χ

Un indice a été introduit pour caractériser les morphologies des lamelles :

$$\chi = \frac{\lambda \times e}{S} \quad (\text{III-2})$$

où

λ = longueur totale des joints entre colonies d'orientations différentes (pas entre les lamelles d'une même colonie)

e = épaisseur des lamelles (fonction de la vitesse de refroidissement)

S = surface d'acquisition

Cet indice est sans dimension et est d'autant plus élevé que le caractère vannerie est fort.

Remarque : il est évident que plus la vitesse de refroidissement est élevée plus les aiguilles sont fines, de ce fait plus la valeur λ est élevée. Pour compenser ce phénomène, on multiplie λ par l'épaisseur des lamelles qui est d'autant plus faible que la vitesse de refroidissement est élevée. Ainsi, au final, l'indice χ ne dépend pas de la vitesse de refroidissement.

Les valeurs extrêmes de cet indice sont calculées ci-dessous. Soit une surface d'acquisition A^2 , a l'épaisseur d'une lamelle et na sa longueur (Figure III-11). Si les lamelles adjacentes appartiennent à des variants différents,

$$P_{total} = \frac{1}{2} \frac{A^2}{na^2} 2a(1+n) = \frac{A^2}{a} \frac{1+n}{n} \quad (\text{III-3})$$

$$\chi_{th} = \frac{P_{total} \times a}{A^2} = \frac{1+n}{n} \quad (\text{III-4})$$

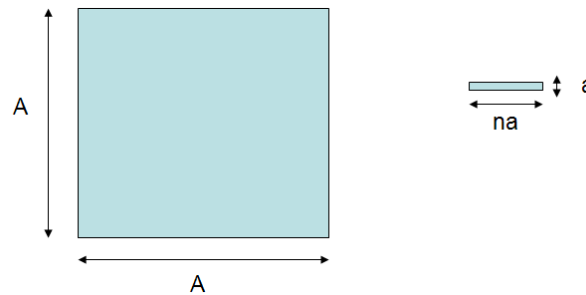


Figure III-11 : Paramètres du calcul des valeurs extrêmes χ théoriques

Typiquement, n varie entre 4 et 10 (données expérimentales). Cela signifie qu'une structure 100 % en vannerie aura une valeur de χ variant de 1,25 à 1,1. Quant à une structure 100 % platelets parallèles, le cas extrême serait un variant présent dans toute l'image. Ainsi, la longueur du joint de grains serait le périmètre de la surface observée = $4A$, donc

$$\chi = \frac{4A \times a}{A^2} = \frac{4a}{A} \simeq 0 \quad (\text{III-5})$$

Le but est d'utiliser cet indice comme outil d'examen microstructural lors des process de fabrication.

c. Traitement d'image

Les images sont codées en RGB, ce qui signifie que chaque pixel possède une composante en R (rouge), G (vert), B (bleu) variant de 0 à 255. Avant le traitement d'image, les images sont traitées avec un filtre médian en général de taille comprise entre 3 et 10 (nombre de rangs de pixels voisins pris en compte). Pour chaque pixel, le filtre relève chacune des valeurs R, G et B des pixels voisins compris dans le rayon médian puis il les range dans l'ordre croissant et il prend la valeur médiane pour enfin l'attribuer au pixel considéré. Deux grands avantages de ce filtre par rapport au filtre moyen sont, premièrement, qu'il ne crée pas de nouvelle couleur étant donné que c'est la valeur médiane qu'il reprend et deuxièmement, qu'il empêche qu'un pixel non significatif puisse affecter la couleur des pixels voisins. Le nombre de voisins pris en compte dépend de la taille du filtre et celle-ci est choisie en fonction du grandissement lors de l'acquisition de l'image. Plus le grandissement est élevé plus la taille du filtre peut être importante. À partir de l'image filtrée, une fonction codée dans MatLab (Grainy) permet de dessiner les joints entre les différentes colonies qui sont caractérisées par une couleur. La Figure III-12 montre l'effet de lissage de ce filtre.

Une image d'une structure de trempe du Zy-4 a été prise au microscope optique en lumière polarisée avec un grandissement de $\times 200$ (Figure III-12a). Elle a été ensuite filtrée avec un filtre médian de taille 5 (Figure III-12b). Puis un traitement de détection des joints a été réalisé sur ces deux images, donnant respectivement l'image de la Figure III-12c et d. Il est clair que sans le filtre, la détection des joints entre colonies est très bruitée.

L'objectif de la fonction « grainy » est de délimiter les zones de pixels ayant le même ton de couleur, c'est-à-dire les mêmes valeurs RGB \pm un écart permis. Pour cela, il compte le nombre de premiers voisins qui possèdent la même valeur en R, G et B avec une tolérance permise fixée par l'opérateur.

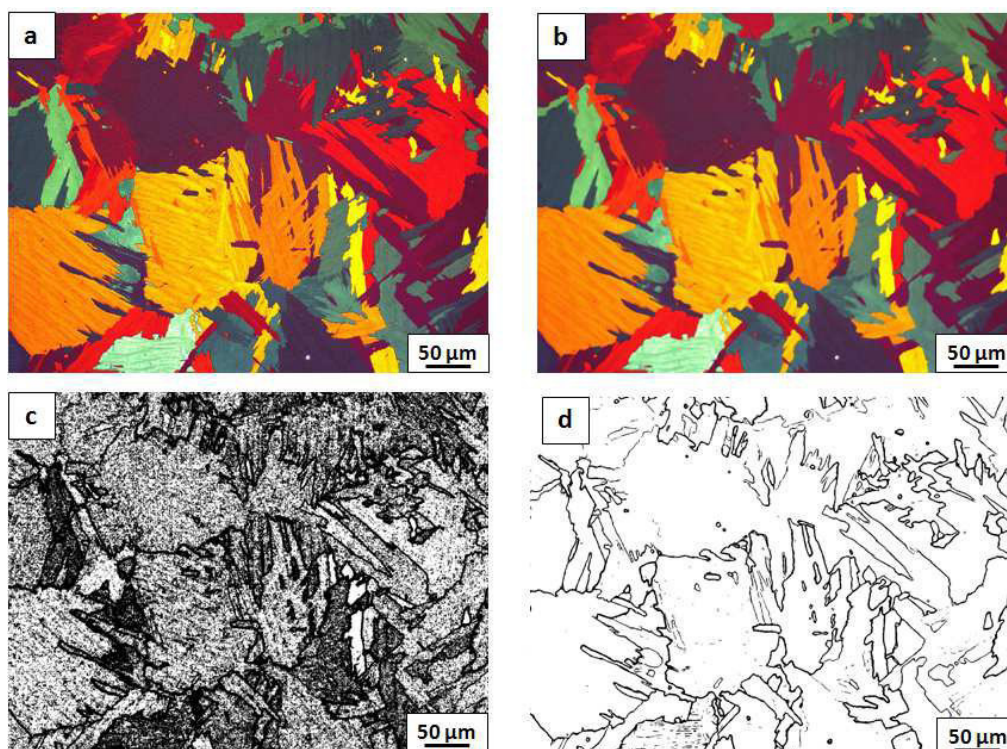


Figure III-12 : a) image au microscope optique en lumière polarisée ; b) image a filtrée avec un filtre médian de taille 5 ; c) traitement d'image de l'image a ; d) traitement d'image de l'image b

L'opérateur fixe un écart des valeurs R, G et B, respectivement δR_i , δG_i et δB_i , permis afin d'observer si le pixel voisin en question présente le même ton de couleur que le pixel considéré, et ceci pour les huit premiers voisins du pixel ($i=1, 2, \dots, 8$) (Figure III-13). Si le nombre de voisins ayant respecté les conditions $|R-R_i| \leq \delta R_i$, $|G-G_i| \leq \delta G_i$ et $|B-B_i| \leq \delta B_i$ est égal au moins à 6, alors le pixel considéré prend la couleur blanche, dans le cas contraire il prend la couleur noir. Au final, on obtient une image en noir et blanc avec en pixels noirs, les joints entre colonies α (Figure III-12 c et d).

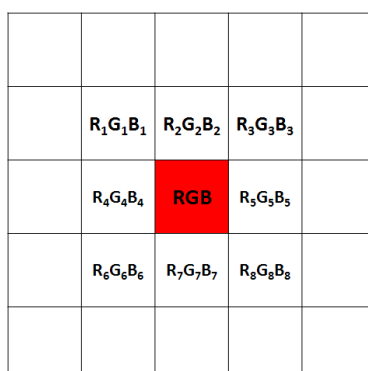


Figure III-13 : Schéma explicatif du programme "grainy"

Un filtre post-traitement a été ajouté afin d'éliminer les pixels noirs isolés sur la nouvelle image en noir et blanc ; peut-être itéré plusieurs fois afin de mieux « nettoyer » l'image. Le nombre d'itérations est choisi par l'opérateur selon une étude visuelle.

Enfin, afin de déterminer λ pour après calculer l'indice χ , les joints entre colonies de lamelles doivent être squelettisés. En effet, les joints présentent une épaisseur plus ou moins grande selon la différence de couleur entre les colonies, ce qui entraîne un artéfact du traitement. On réduit ainsi les joints à une ligne de pixels noirs et par suite le nombre de pixels noirs multiplié par l'échelle donne directement λ .

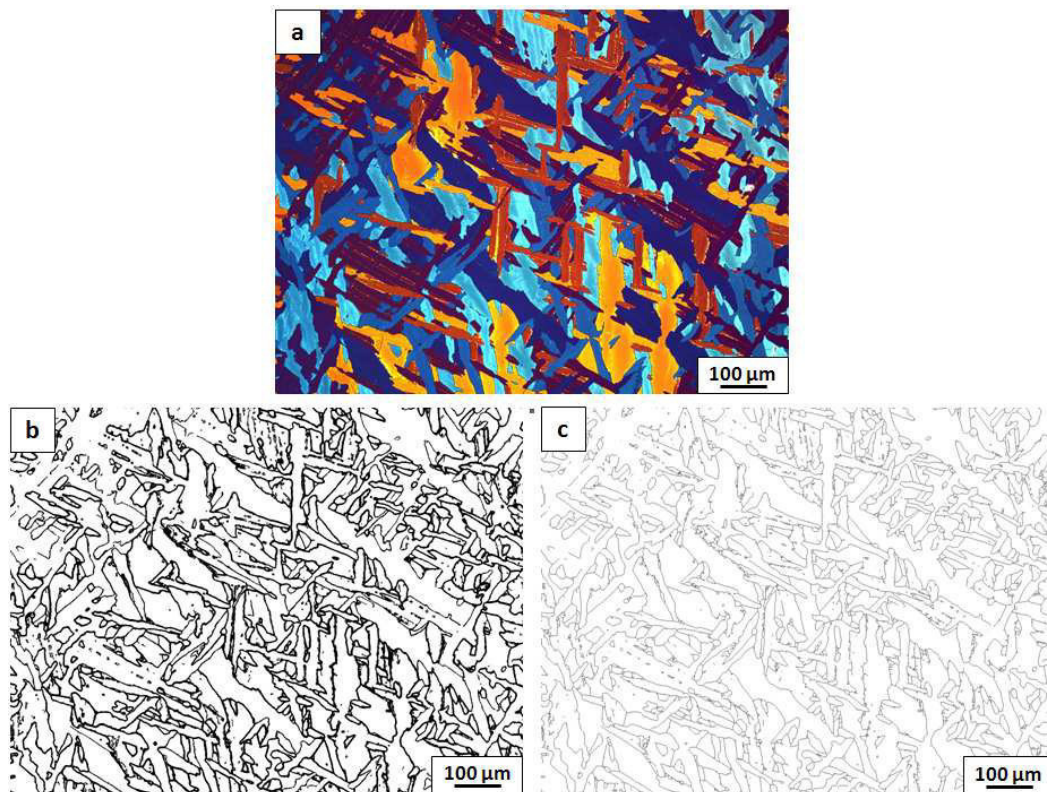


Figure III-14 : a) micrographie optique en lumière polarisée ; b) image des joints entre colonies de a ; c) la squelettisation de l'image b

Les *output* de la fonction Grainy à partir d'une micrographie optique en lumière polarisée (Figure III-14a) sont deux images : l'une en noir et blanc qui représente les joints entre colonies de lamelles (Figure III-14b) et l'autre qui est la squelettisation de cette dernière (Figure III-14c). Une rapide vérification visuelle peut être effectuée par l'opérateur pour valider les paramètres entrants. Quant au paramètre e (épaisseur des lamelles), sa détermination s'effectue, manuellement, avec la méthode des intercepts. La surface d'acquisition est connue. Il est maintenant possible de calculer l'indice χ .

d. Validation du traitement d'image

Le traitement d'image décrit dans le paragraphe précédent a permis de quantifier les caractères vannerie et platelets parallèles à partir des micrographies optiques prises en lumière polarisée. Mais au préalable, ce traitement d'image doit être validé par une autre méthode plus précise, telle qu'une analyse EBSD. Il faut aussi déterminer les influences de certains paramètres de réglages lors de l'acquisition de l'image.

i. Comparaison avec l'analyse EBSD

Une large plage d'un échantillon de Zy-4 trempé a été observée au MEB puis a été analysée avec la méthode EBSD. La Figure III-15 montre deux cartographies EBSD : la Figure III-15a est une cartographie IPF et la Figure III-15b est une cartographie de joints de grain. La Figure III-15c est le résultat du traitement d'image « grainy » sur la cartographie IPF.

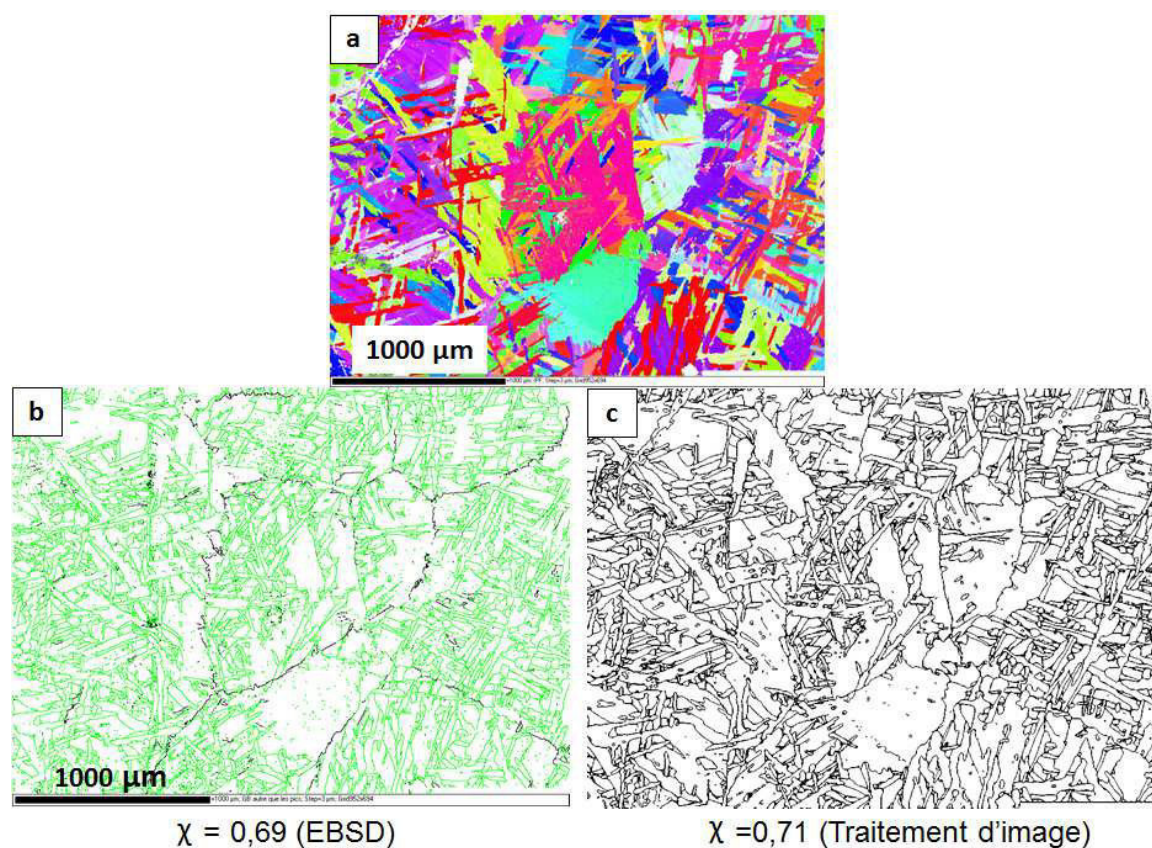


Figure III-15 : Validation du traitement d'image à l'aide de l'analyse EBSD

L'analyse EBSD ainsi que le traitement d'image permettent d'obtenir la longueur de joint totale entre colonies de lamelles à partir de laquelle il est possible de calculer l'indice χ .

Les indices obtenus avec la méthode EBSD et avec le traitement d'image sont, respectivement égaux à 0,69 et 0,71. Ces deux valeurs sont assez proches et ont permis donc de valider le traitement d'image.

ii. Effet de l'angle de polarisation

Parallèlement, l'angle du polariseur peut influencer l'indice χ . Il est important de déterminer cet effet. Pour ce faire, deux séries d'une dizaine d'images ont été acquises, chacune avec deux angles de polarisation différents. Les Figure III-16a) et b) montrent deux micrographies prises sous deux angles de polarisation différents. Nous observons bien qu'en fonction de l'angle de polarisation, des colonies peuvent être visibles (voir les zones fléchées).

Le calcul de l'indice χ a été effectué sur chacune de ces images et les résultats sont présentés dans la Figure III-16c. La moyenne de chaque série d'images est représentée sur la droite de la figure avec son écart type. L'angle de polarisation peut faire varier légèrement l'indice χ d'une image à une autre mais n'a pas d'effet significatif en moyenne.

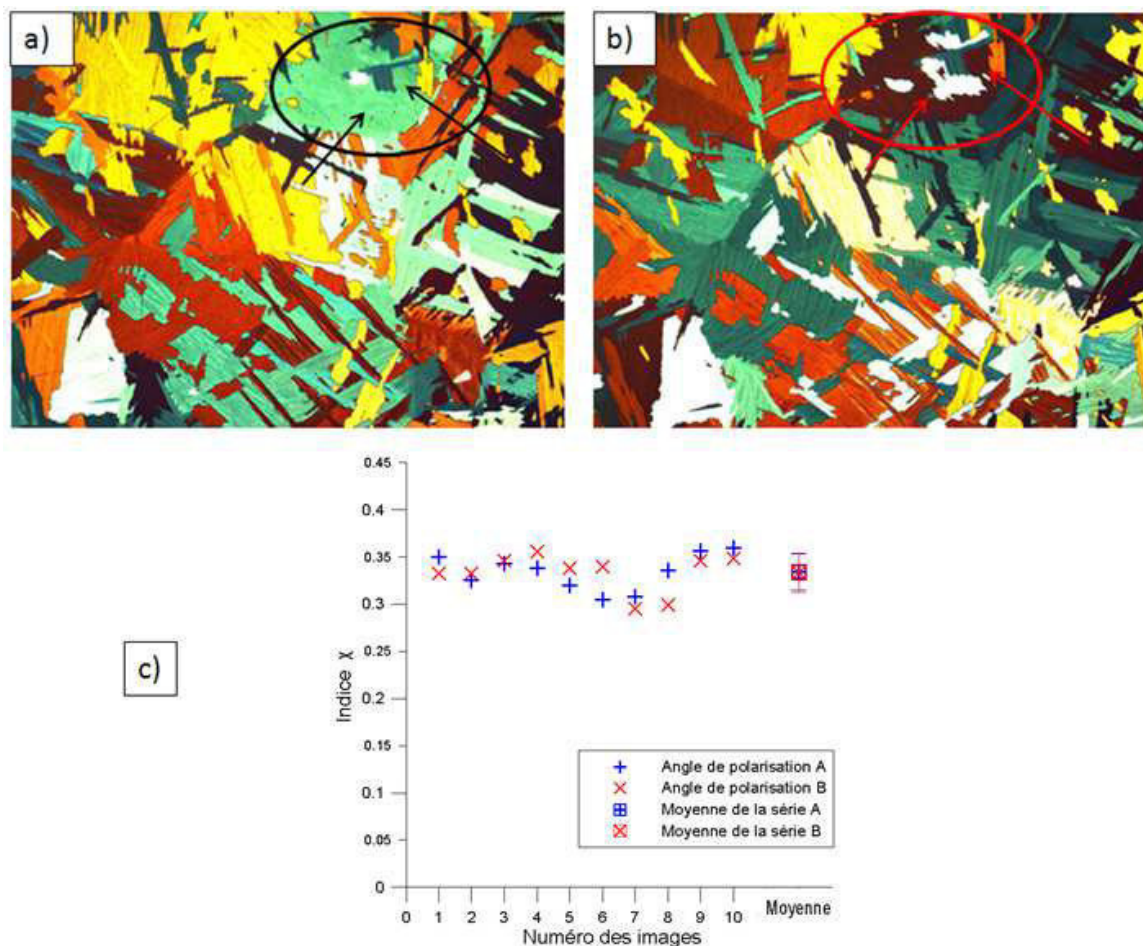


Figure III-16 : Effet de l'angle de polarisation sur l'indice χ ; a) micrographie prise sous un angle de polarisation A ; b) micrographie prise sous un angle de polarisation B ; c) calculs des indices χ

iii. Effet du grossissement

Enfin, le dernier paramètre à étudier est l'effet du grossissement. Les structures de trempe, et notamment l'épaisseur des lamelles, dépendent de la vitesse de refroidissement. Il est nécessaire d'adapter le grossissement en fonction de la finesse de la microstructure. Or selon le grossissement la résolution n'est pas la même, il faut dès lors choisir pour chaque grossissement un filtre médian différent. Usuellement, avec un fort grossissement, un filtre médian avec un grand rayon est nécessaire. En effet, les joints entre lamelles d'une même colonie sont souvent observés et le contraste entre ces lamelles est parfois très prononcé. Cela se traduit par un changement de couleur, et ce qui a pour effet la détection des joints entre lamelles d'une même colonie (Figure III-17). Pour pallier cet inconvénient, il faut augmenter le rayon du filtre médian. À faible grossissement, il s'agit de l'opposé, les micrographies peuvent présenter un trop faible contraste entre deux colonies différentes, dans ce cas il faut diminuer le rayon du médian pour pouvoir les détecter. En conclusion, le grossissement doit être choisi en fonction de l'épaisseur des lamelles et les paramètres du traitement de l'image sont ajustés selon ce grossissement.

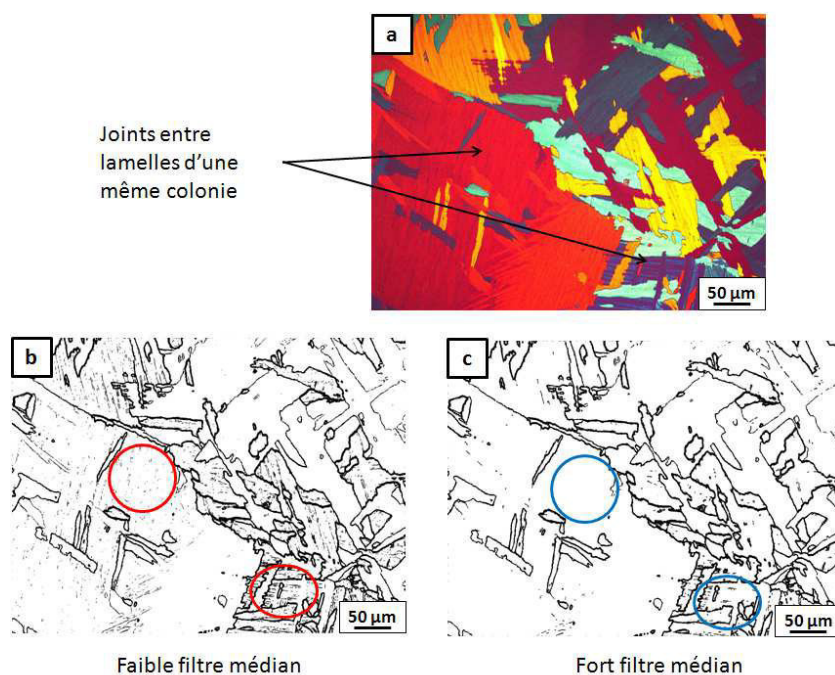


Figure III-17 : Effet du grossissement ; a) image brute ; b) image traitée avec un faible filtre médian ; c) image traitée avec un fort filtre médian

III.3. Analyse EBSD

Il est bien connu que la texture, tant morphologique que cristallographique, est responsable de l'anisotropie des propriétés du matériau et essentiellement de leur comportement mécanique. La texture morphologique a été traitée dans le paragraphe précédent, dans ce

dernier paragraphe, on traite de la caractérisation cristallographique des microstructures de trempe. À l'étape qui nous concerne du processus, la taille des grains β est trop grande pour faire une étude statistique de la texture. Pour étudier l'effet d'une trempe sur la sélection des variants, la méthode de caractérisation retenue est l'analyse EBSD. Cette méthode d'analyse cristallographique a pour avantage d'être une méthode locale et accessible qui est adaptée pour étudier la sélection des variants α , en particulier celle potentiellement engendrée par la transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$.

III.3.1. Préparation des échantillons

Les échantillons de Zy-4 à l'état initial ont été enrobés et polis mécaniquement avec des papiers abrasifs SiC jusqu'au grade 2500 (9 μm). Ce polissage a été suivi d'un polissage électrolytique avec une solution contenant 80 %vol d'acide acétique et 20 %vol d'acide perchlorique, sous une tension de 25 V appliquée pendant 10 s. Les échantillons sont ensuite désenrobés pour le traitement thermique. Après les traitements thermiques, ils subissent seulement un polissage électrolytique avec les mêmes paramètres que précédemment pour enlever la fine couche oxyde présente à la surface. L'épaisseur d'enlèvement est estimée par la perte de masse et est égale à environ 2 μm .

Pour les éprouvettes de trempe sous charge, elles sont polies de la même manière que les éprouvettes de l'état initial.

III.3.2. Principe de l'analyse EBSD

Classiquement l'analyse EBSD (Electron Back Scattering Diffraction) est mise en œuvre dans un MEB, elle est dédiée principalement à l'étude de l'analyse des phases et de l'orientation cristalline du matériau [5]. Les principes et applications sont très bien détaillés dans le livre « L'analyse EBSD » [6]. D'un point de vue expérimental, il faudra toujours trouver un compromis acceptable entre la dimension du champ exploré et le nombre de points analysés sur ce champ, et le temps d'acquisition en chaque point. Le compromis recherché est l'obtention d'un diagramme de qualité acceptable pour un temps total d'expérience pas trop excessif. Le dispositif de l'analyse EBSD dans un MEB consiste en :

- un faisceau focalisé d'électrons d'énergie suffisante (15 à 30 keV)
- un détecteur EBSD spécifique, constitué d'un écran fluorescent sur lequel les électrons rétrodiffusés forment des diagrammes appelés bandes de Kikuchi, et d'une caméra à bas niveau de lumière qui prend en temps réel l'image de ces diagrammes.

L'échantillon doit être plan et est incliné à 70°, ce qui correspond à un bon compromis entre l'obtention d'une émission maximale d'électron rétrodiffusés et la nécessité de limiter les effets néfastes de la rugosité résiduelle de l'échantillon (Figure III-18a).

Parmi les électrons incidents rétrodiffusés hors de l'échantillon, une fraction est en condition de Bragg avec les différentes familles de plans atomiques. Ces électrons, diffractés par une famille de plans donnée, forment deux cônes de diffraction (Figure III-18b et c) et les intersections entre ces cônes et l'écran fluorescent forment des lignes qui délimitent une bande que l'on appelle bande de Kikuchi. Ces bandes sont donc la trace sur l'écran des plans diffractants. À partir de ces diagrammes de Kikuchi (Figure III-18b), un logiciel permet de déterminer automatiquement l'orientation cristalline à partir des bandes, la structure cristalline. La détection numérique de ces bandes peut être effectuée par différents algorithmes mais l'approche la plus efficace de nos jours est la transformée de Hough. Cette transformation consiste à associer une droite de l'espace (x,y) en un point de l'espace (ρ, θ) . Plus précisément, à chaque point de l'espace (x,y) est associée une fonction $\rho(\theta) = x \cos \theta + y \sin \theta$ donnant lieu à une courbe sinusoïdale dans l'espace (ρ, θ) (Figure III-19a). Une série de points (x_i, y_i) alignés sur une droite est ainsi représentée par une série de sinusoïdes (voir Figure III-18c) dans l'espace (ρ, θ) qui s'intersectent toutes en un point facilement identifiable. Ses coordonnées repèrent la distance entre l'origine et la droite considérée (ρ) et la direction normale à cette droite (θ).

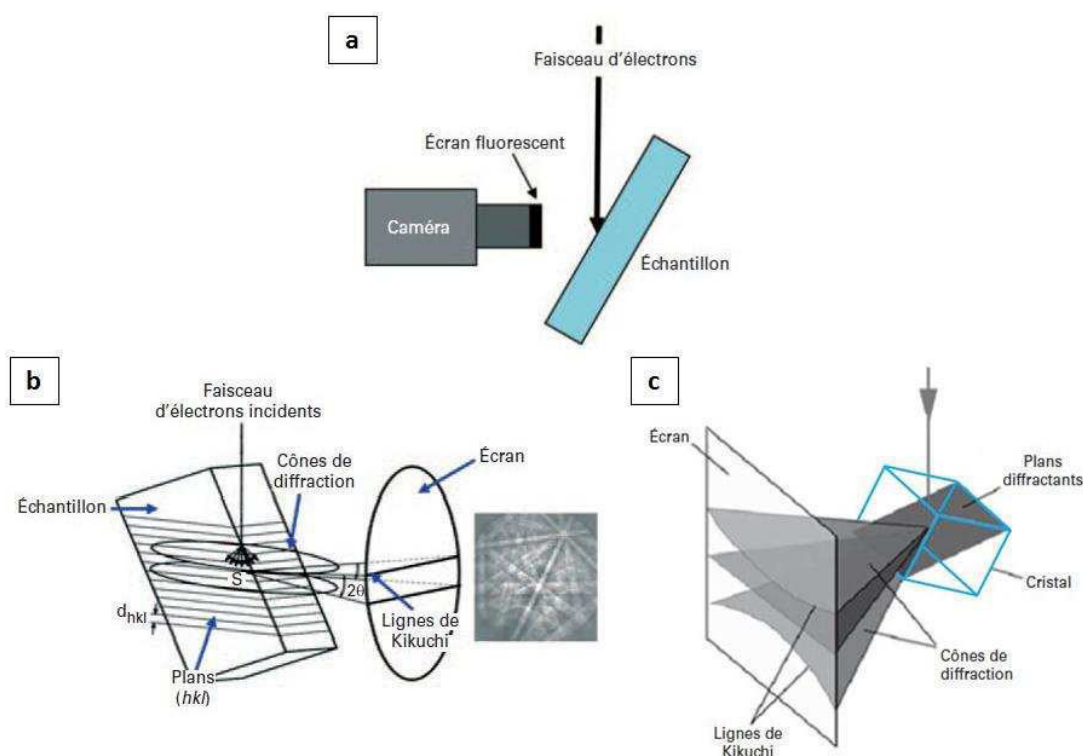


Figure III-18 : a) schéma du dispositif de l'analyse EBSD ; b) principe de formation des diagrammes de Kikuchi c) autre vue de la formation des bandes de Kikuchi [5]

La transformée de Hough d'une bande de Kikuchi est une tache claire (Figure III-19c) et en reprenant les coordonnées θ et ρ de son centre, on peut retracer la ligne médiane des bandes de Kikuchi (Figure III-19d). Et comme ces bandes sont les traces des plans cristallins du

matériau, les angles interplanaires permettent l'indexation des différents plans diffractés et donc d'en déduire l'orientation cristalline autour du point éclairé par le faisceau focalisé. Les informations sortantes sont les trois angles d'Euler qui expriment les rotations qui font passer du repère du cristal venant d'être indexé au repère de l'échantillon.

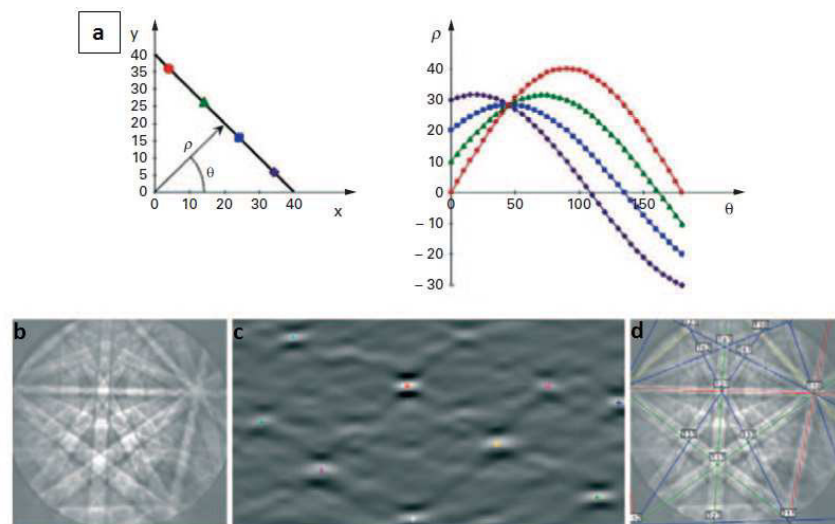


Figure III-19 : a) transformation d'une droite de l'espace (x,y) en un point de l'espace (θ,ρ) ; b) diagramme de Kikuchi ; c) transformation de Hough de ce diagramme ; d) superposition des bandes de Kikuchi avec leur médianes

Il existe plusieurs définitions des angles d'Euler, la plus usuelle est celle donnée par Bunge [7][8] : pour passer du repère cristallin $R_c (x_c, y_c, z_c)$ au repère échantillon $R_e (x_e, y_e, z_e)$, on effectue trois rotations successives (Figure III-20) :

- φ_1 est l'angle de rotation du repère R_c autour de son axe Z_c , ce qui définit le nouveau repère R_c'
- Φ est l'angle de rotation de ce nouveau repère R_c' autour de son axe x_c' , ce qui conduit au nouveau repère R_c''
- φ_2 est l'angle de rotation du dernier repère autour de son axe z_c'' , ce qui conduit au repère de l'échantillon R_e

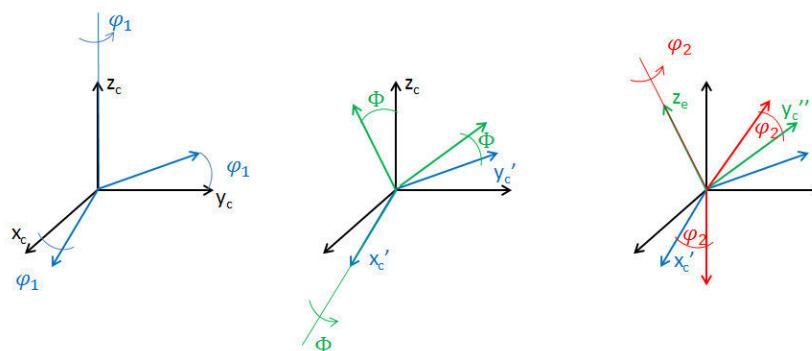


Figure III-20 : Définition des angles d'Euler selon Bunge

Les trois rotations sont définies par des matrices de rotation notées respectivement g_1 , g_2 et g_3 et dont les expressions sont données ci-dessous :

$$g_1 = \begin{bmatrix} \cos\varphi_1 & \sin\varphi_1 & 0 \\ -\sin\varphi_1 & \cos\varphi_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad g_2 = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos\Phi & \sin\Phi \\ 0 & -\sin\Phi & \cos\Phi \end{bmatrix} \quad g_3 = \begin{bmatrix} \cos\varphi_2 & \sin\varphi_2 & 0 \\ -\sin\varphi_2 & \cos\varphi_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

En résumé, l'analyse EBSD nous donne pour chaque pixel de la cartographie, l'orientation cristallographique locale de l'échantillon. Le pas de balayage est fixé par l'opérateur.

III.3.3. Méthodologie de quantification des variants α

L'exploitation des cartes a été réalisée avec le logiciel HKL Channel 5. Les plages ont été observées avec un grossissement de $\times 400$ et leur surface est généralement égale à $0,5 \text{ mm}^2$. Le balayage du faisceau d'électrons avec un pas de $3 \text{ }\mu\text{m}$ a été choisi. Maints types de cartes peuvent être engendrés par ce logiciel, nous présentons celles qui sont principalement utilisées dans cette thèse. On peut se référer au livre « Electron Backscatter Diffraction in Materials Science » pour plus de détails [9].

Une figure de pôles (Pole Figure) permet de situer l'orientation d'un plan cristallin dans l'échantillon alors qu'une figure de pôles inverse (Inverse Pole Figure) donne l'orientation d'une direction particulière de l'échantillon par rapport aux axes du repère cristallin. Une figure de pôles n'est pertinente que si la plage d'observation contient un nombre suffisant de grains. Une carte colorée selon l'IPF peut avoir l'intérêt de montrer en plus de leur orientation, la morphologie des grains ; par la couleur, elle peut aussi donner la localisation d'un variant α particulier au sein d'un ex-grain β ou sur la plage d'observation. Ces cartes sont complémentaires ; elles permettent de déterminer les fractions de chacun des variants α au sein d'un ex-grain β .

Il est évident que le logiciel HKL ne distingue pas les joints de grains des lamelles α des ex-joints des grains β . Le repérage des ex-grains β se fera donc manuellement et pour ce faire il faut se baser sur trois cartes. La première carte est en Band Contrast (BC) (Figure III-21a). Le niveau de gris de cette carte est lié à la qualité de l'indexation, plus le gris est clair plus l'indexation est bonne.

Généralement la morphologie des lamelles est aisément observable mais celle des ex-grains β n'est parfois pas évidente. La deuxième carte est colorée en IPF, souvent relative à l'axe Z de la billette, où chaque couleur représente une orientation de variant α (Figure III-21b). Enfin sur la dernière carte, sont tracées en couleur verte les désorientations possibles entre les lamelles α , et en noir les autres désorientations qui seront donc les ex-joints des grains β (Figure III-21c). La comparaison de ces trois cartes permet de tracer les joints des ex-grains β .

Remarque : Les pixels gris de la Figure III-21c sont des désorientations de 30° autour de l'axe c de la maille hexagonale. Ceci est un artéfact du logiciel qui confond les plans prismatiques de 1^{ère} espèce avec ceux de 2^{ème} espèce. Cet artéfact est détaillé dans l'annexe 2.

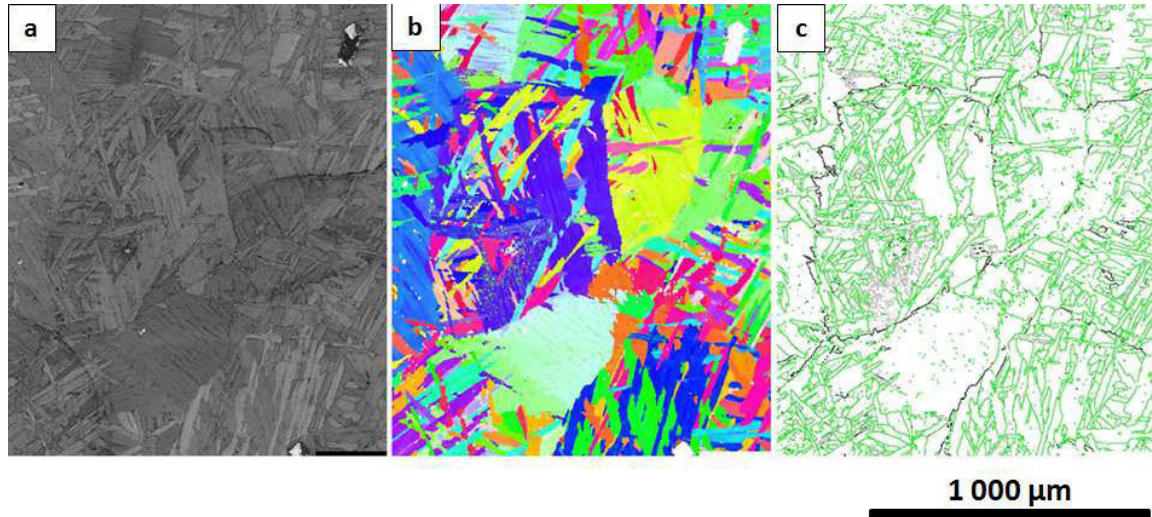


Figure III-21 : Détermination d'un ex-grain β : a) cartographie BC ; b) cartographie IPF ; c) cartographie GB

Lors de la transformation de phase $\beta \rightarrow \alpha$, un grain β peut engendrer douze variants α en suivant les relations d'orientation de Burgers, deux jumeaux provenant de chaque plan de type $\{110\}$. Par conséquent, au sein d'un ex-grain β , il est possible de trouver six pôles (0001).

De ce fait, une fois que l'ex-grain β est repéré, les figures de pôles permettent de quantifier la fraction de chaque variant α de la manière suivante :

Un exemple de l'analyse d'un ex-grain β est présenté sur la Figure III-22. La sélection manuelle du grain β sur une carte colorée en code de couleur IPF est montrée dans la Figure III-22a.

La distribution des angles de désorientation entre les grains α de la Figure III-22b présente bien les cinq angles θ_{\min} : un pic à 10° , deux pics très proches l'un de l'autre, un à 60° et l'autre vers 61° ; un pic vers 63° et enfin le dernier à 90° . La figure de pôles (0001), qui sont aussi appelés les axes c des mailles hexagonales et les figures des pôles $\{1\bar{1}00\}$ et $\{1\bar{2}10\}$ communément appelés, respectivement, les axes perpendiculaires aux plans prismatiques de 1^{ère} et 2^{ème} espèce, elles sont présentées sur la Figure III-22c.

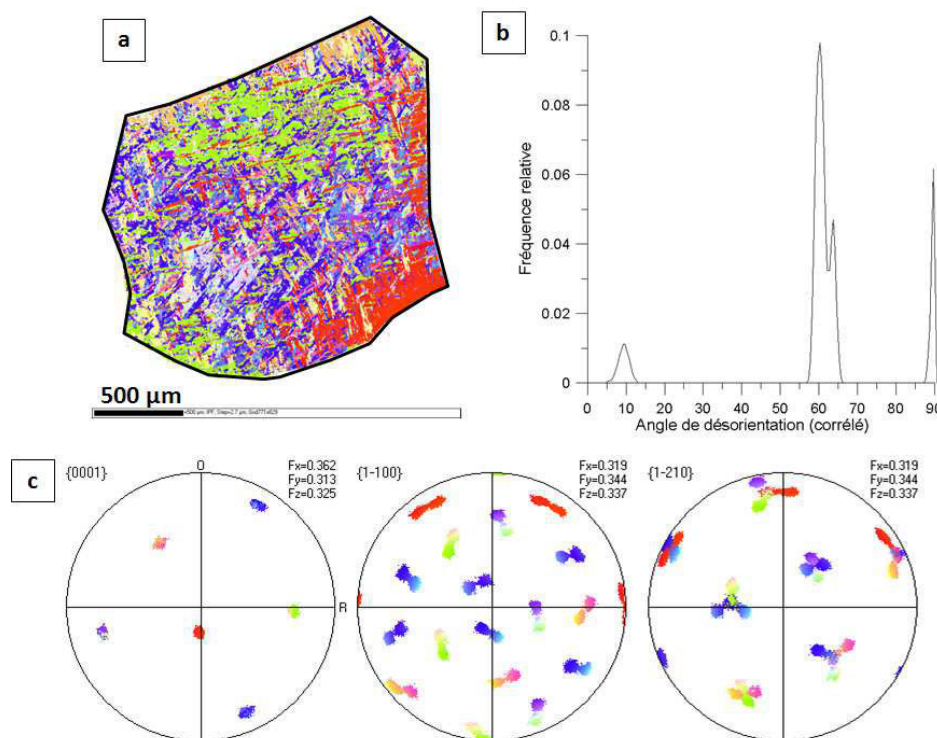


Figure III-22 : Exemple d'analyse d'un ex-grain β

Sur les figures de pôles de la Figure III-22 sont indiqués les facteurs de Kearns (définis dans §II-2.3.c) de chacun des axes du repère échantillon. Le repère des figures de pôles est généralement associé au repère de la billette et son orientation correspond à l'orientation de l'échantillon dans le repère d'acquisition. La quantification des variants α se fait en deux étapes :

- dans un ex-grain β on peut observer six pôles $\{0001\}$, un exemple est montré sur la Figure III-23a, la fraction de chacun de ces pôles se détermine en l'isolant des autres.
- pour un pôle $\{0001\}$, on peut observer deux pôles $\{1\bar{1}00\}$ (ou $\{1\bar{2}10\}$) distincts (Figure III-23b). De la même manière, on peut les sélectionner chacun séparément pour obtenir la fraction de chacun de ces deux pôles. Ces deux pôles sont désorientés l'un de l'autre d'environ 10° autour de l'axe c, ce sont les variants jumeaux (Figure III-23c).

De cette manière, on peut quantifier chacun des variants α et voir sur la carte IPF leur orientation morphologique ainsi que leur localisation au sein de l'ex-grain β . Le résultat de la quantification est montré sur la Figure III-24.

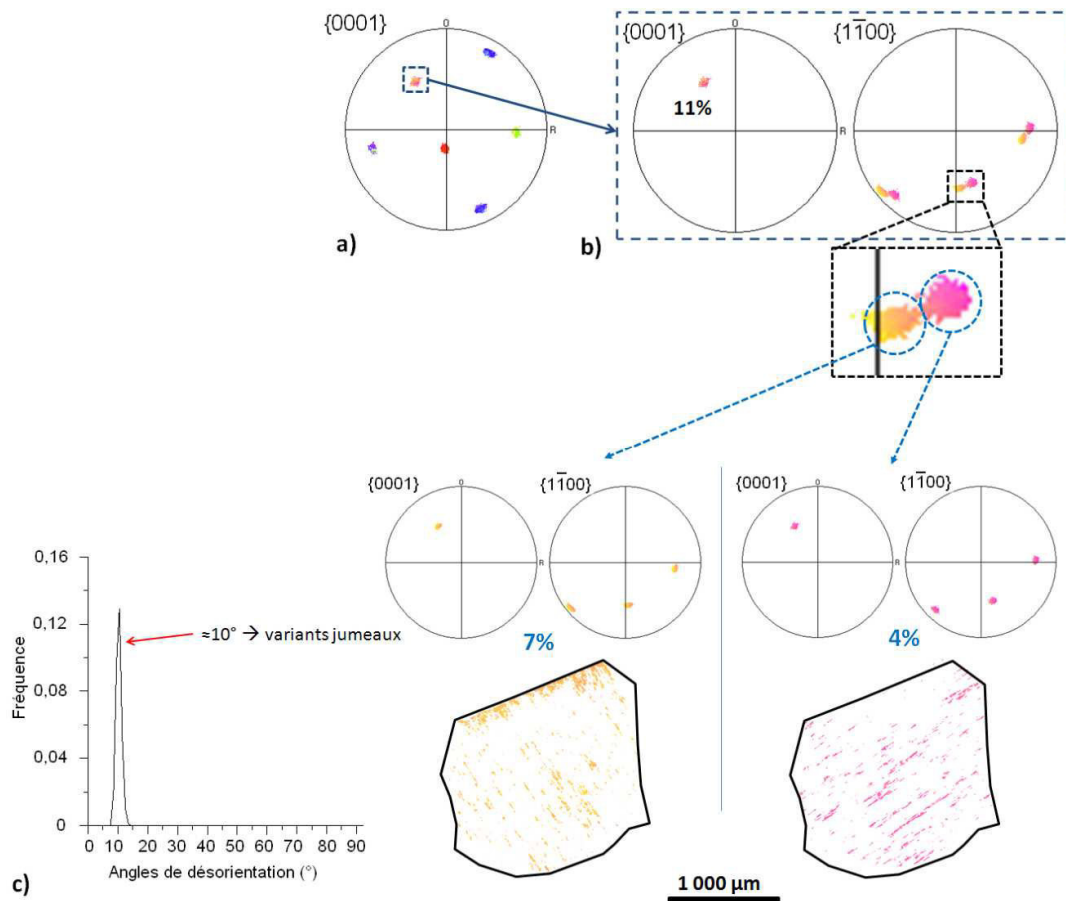


Figure III-23 : Méthodologie de quantification des variants α

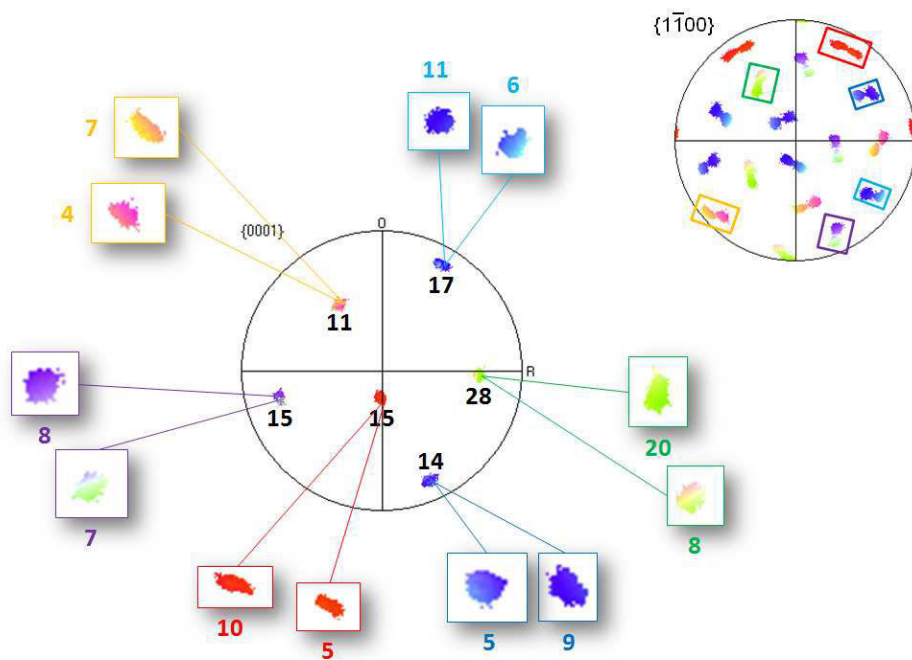


Figure III-24 : Résultats (en %) de la quantification des variants α d'un ex-grain β

III.3.4. Suivi d'un ex-grain β au cours des traitements thermiques

À présent, la quantification des variants α va être utilisée pour caractériser l'influence des paramètres tels que la vitesse de refroidissement, l'application d'une déformation élastique, sur la sélection des variants. Il est bien évident que l'on ne peut suivre un ex-grain β en volume, ce protocole expérimental ne concerne donc que l'étude sur l'effet de la vitesse de trempe en surface. Cependant des découpes au fil des échantillons trempés ont été effectuées à 2 mm de la surface (Figure III-25a) ainsi qu'au milieu de l'échantillon (Figure III-25b), parallèlement à la surface d'observation, pour étudier l'effet de la vitesse de trempe en volume. Ces études ne peuvent pas être statistiques car le nombre de grains observés est limité étant donné que le temps d'acquisition et de dépouillement est très long. Mais elles peuvent être relativement quantitatives en portant sur une dizaine d'ex-grains β afin de donner une éventuelle tendance de la sélection.

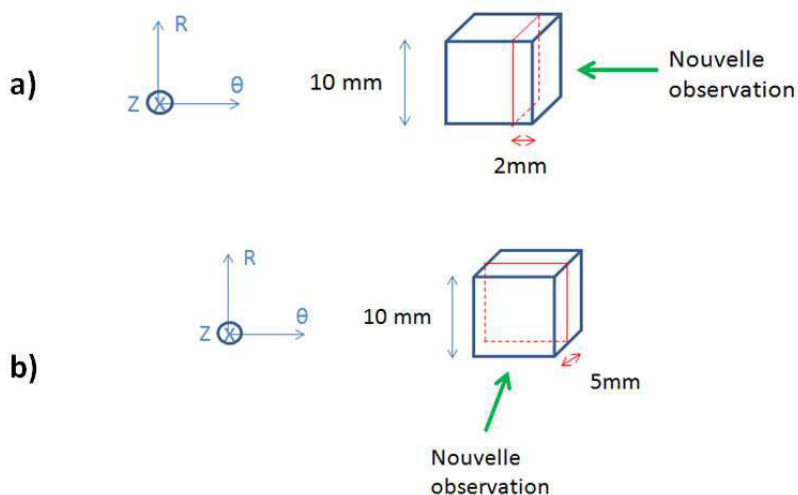


Figure III-25 : Découpes au fil pour les études en volume

Une fois que les échantillons sont polis, quatre empreintes de microdureté sont effectuées sur la surface afin de repérer un ou quelques ex-grains β (Figure III-26). Cette zone d'observation est ensuite analysée avec un MEB-FEG pour quantifier les variants. L'éprouvette subit ensuite un traitement thermique (montée en β et trempe) puis la même zone d'observation est analysée à l'EBSD une seconde fois (Figure III-27). L'évolution de la taille des grains ainsi que le facteur de Kearns de la normale à la surface sont aussi indiqués.

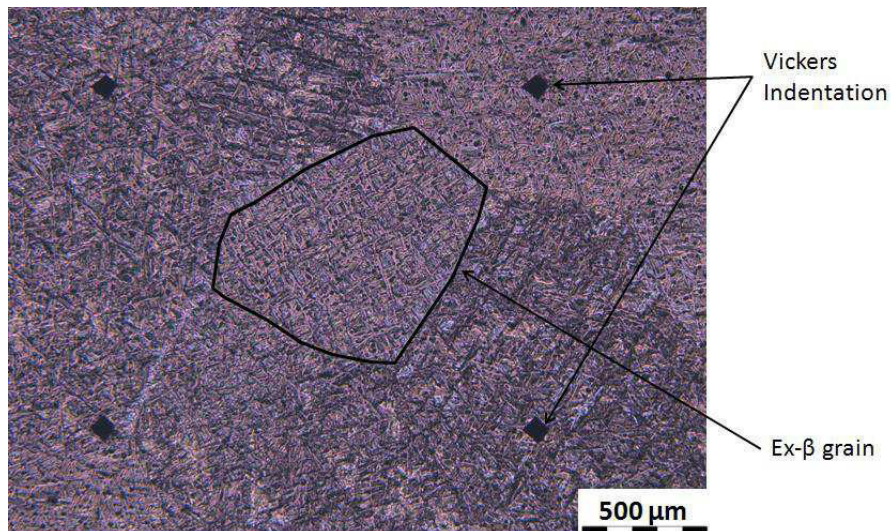


Figure III-26 : Repérage d'un ex-grain β à l'aide des empreintes de dureté Vickers

Ce même procédé peut être répété plusieurs fois afin d'étudier l'effet de plusieurs trempes successives.

Il est, sans conteste, plus facile de travailler en surface à la fois en expérimentation et en modélisation. Mais au cours du process de fabrication, la peau de la billette est enlevée avant l'étape de filage. Il est donc clair qu'il faut aussi analyser les évolutions à l'intérieur de l'échantillon. Bien entendu, l'étude en surface permet aussi de comprendre le phénomène de sélection des variants α . Au niveau industriel, d'autres produits outre les billettes destinées à être transformées en tubes d'assemblage, subissent, eux aussi, une trempe, et les évolutions en surface sont aussi importantes qu'au cœur.

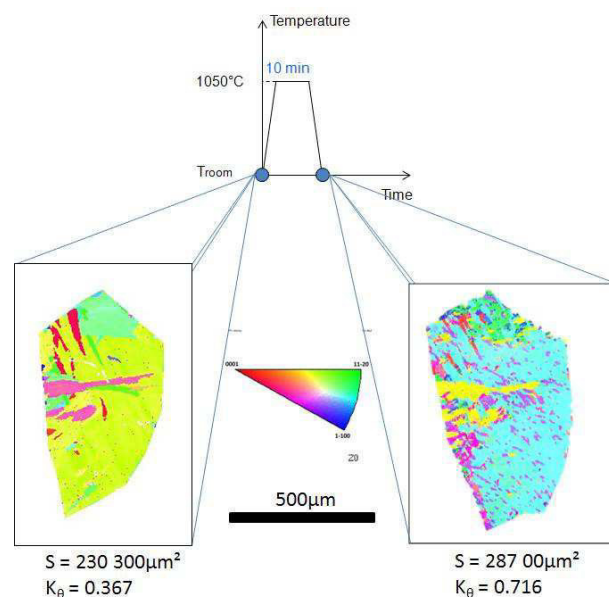


Figure III-27 : Analyse EBSD avant et après un traitement thermique d'un ex-grain β

III.4. Conclusion

Dans ce chapitre, les différents procédés expérimentaux et méthodes d'analyse utilisés pour étudier les évolutions microstructurales, ont été présentés. Tout d'abord, ont été détaillés les traitements thermiques mis en œuvre pour étudier leur influence sur la taille, la morphologie ainsi que les orientations cristallographiques des grains β et α . Ensuite ont été décrits les divers traitements et analyses d'image pour mettre en évidence ces influences : estimation de la cinétique de croissance des grains β , quantification des caractères vannerie/platelets parallèles, à l'aide d'un indice χ , sur différents types de microstructures de trempe du Zy-4. Et enfin, la dernière partie traite essentiellement de l'analyse EBSD, une analyse des orientations des grains très locale. Cette analyse est utilisée plus particulièrement pour l'étude de la sélection des variants α pendant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$.

Les résultats de ces différentes expériences sont présentés dans le chapitre suivant.

Références :

- [1] O. T. Woo and K. Tangri, "Transformation characteristics of rapidly heated and quenched zircaloy-4-oxygen alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 79, no. 1, pp. 83–94, Jan. 1979.
- [2] A.R. Massih, T. Andersson, P. Witt, M. Dahlbäck, and M. Limbäck, "Effect of quenching rate on the β -to- α phase transformation structure in zirconium alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 322, no. 2–3, pp. 138–151, Nov. 2003.
- [3] J. C. Brachet, L. Portier, T. Forgeron, J. Hivroz, D. Hamon, T. Guilbert, T. Bredel, P. Yvon, J. P. Mardon, and P. Jacques, "Influence of hydrogen content on the alpha/bêta phase transformation temperatures and on the thermal-mechanical behavior of Zy-4, M4 (ZrSbFeV) and M5 (ZrNbO) alloys during the first phase of LOCA transient," in *ASTM STP 1354. Zirconium in Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium*, 2002, pp. 3–14.
- [4] M. Mondon, "Rhéologie et évolutions microstructurales de l' alliage Zircaloy-4 en mise à forme en chaud," mémoire d'ingénieur CNAM, 2008.
- [5] T. Baudin, "Analyse EBSD Principe et cartographies d'orientations," *Techniques de l'ingénieur*, pp. 1–17, 2010.
- [6] T. Baudin, D. Boivin, F. Brisset, R. Chiron, J. Crépin, D. Dingley, A. F. Gourgues, J. Pouchou, F. Robaut, P. Rolland, J. Thomas, A. Tommasi, and S. Zaefferer, *L'analyse EBSD : principes et applications*. 2004, 213 pages.
- [7] H. J. Bunge and C. Esling, "Texture et anisotropie des matériaux," *Techniques de l'ingénieur*, pp. 1–39, 1997.
- [8] H. J. Bunge, *Texture analysis in materials science: mathematical methods*, Butterworths, 2nd ed. 1982, 593 pages.
- [9] A. J. Schwartz, M. Kumar, and B. L. Adams, *Electron Backscatter Diffraction in Materials Science*. Springer science & Business Media, 2000, 342 pages.

CHAPITRE 4

Chapitre IV : Influence des traitements thermiques sur la microstructure de trempe du Zircaloy-4

La microstructure de trempe après les étapes de forgeage constitue l'état de départ pour l'extrusion des tubes des futures gaines. Il est important de maîtriser les étapes de mise en forme antérieures afin d'optimiser cette microstructure. Les méthodes de caractérisation et de quantification de la morphologie et des orientations des grains présentées dans le chapitre précédent, ont permis de mettre en évidence l'influence des traitements thermiques et thermomécaniques sur la microstructure de trempe du Zy-4. Les résultats de ces caractérisations sont exposés dans le présent chapitre. Mais avant toute chose, il nous faut définir les états initiaux du matériau d'étude.

La première section consiste donc à présenter les différentes microstructures des matériaux reçus de notre partenaire CEZUS - Areva. La morphologie initiale des ex-grains β et des lamelles α ainsi que leurs orientations cristallographiques sont précisées après une validation des méthodes de quantification utilisées.

Dans la deuxième section, les effets des traitements thermiques et thermomécaniques sur ces microstructures sont mis en évidence au moyen de ces quantifications, et en particulier les effets de la trempe, à la fois en surface et en volume, ainsi que l'effet d'une contrainte appliquée au matériau lors de celle-ci.

Enfin dans une dernière section, les résultats expérimentaux concernant la sélection des variants sont confrontés à ceux de la modélisation.

IV.1. Caractérisation des états initiaux

Les propriétés mécaniques des métaux sont étroitement liées à leur mise en forme par l'intermédiaire de leur microstructure, définie par une série de paramètres tels que la taille et la morphologie des grains et la texture cristallographique. Lors de la trempe effectuée sur une billette, du fait de la taille de celle-ci et de la faible conductivité thermique du zirconium, il se crée un gradient de la vitesse de trempe le long du rayon de la billette. Ces caractéristiques sont détaillées dans cette section pour une billette de Zy-4 trempée au moyen de l'étude de la taille des grains α et β le long du rayon, de la quantification des caractères morphologiques *vannerie* et *platelets parallèles* et enfin de la détermination de l'orientation cristallographique des grains.

IV.1.1. Taille des grains

Les microstructures des deux billettes B et T de Zy-4 reçues et déjà décrites dans le §III.1 sont montrées sur les Figure IV-1 (B) et 2 (T). La Figure IV-1a présente la microstructure de la billette brute de forge prise dans le plan normal à l'axe z dans le repère cylindrique de la billette et la Figure IV-1b dans le plan normal à l'axe r.

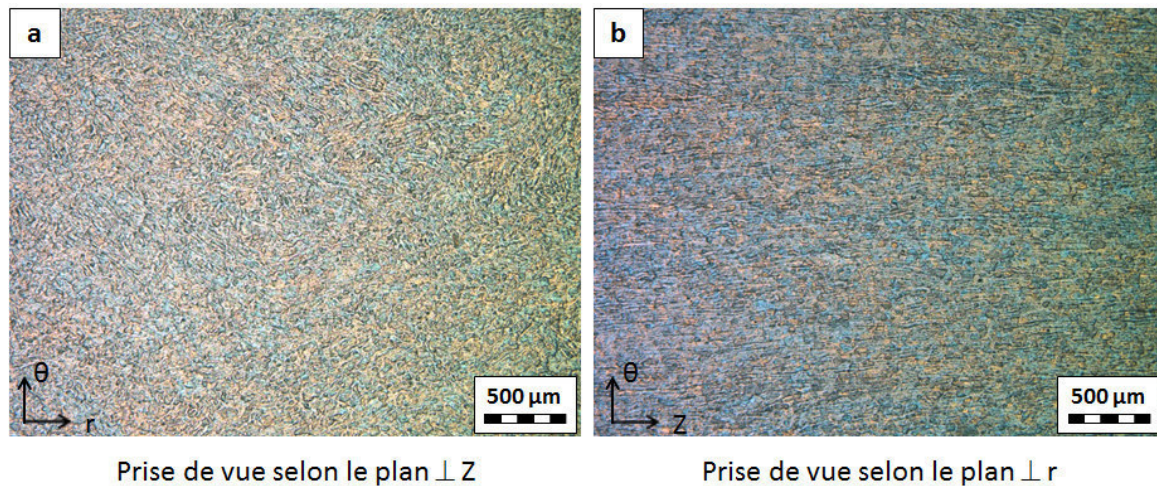


Figure IV-1 : Micrographies de la billette brute de forge (B) prises en lumière polarisée

L'état brut de forge montre une microstructure granulaire. Étant donné qu'à température ambiante le matériau est entièrement en phase α , il s'agit de grains α et les ex-grains β ne sont pas visibles. La structure est allongée selon l'axe z, la taille des grains α est de l'ordre de $37 \mu\text{m}$ et il n'y a pas d'évolution remarquable le long du rayon de la billette. Quant à la structure de la billette trempée, c'est une structure de Widmanstätten qui montre des lamelles de phase α au sein des ex-grains β (Figure IV-2).

Ceux-ci ont un diamètre moyen (diamètre du cercle ayant la même aire que celle du grain) d'environ $1450 \mu\text{m}$ avec une étendue de l'ordre de $400 \mu\text{m}$, soit 30 % de la valeur moyenne, ce qui signifie que la taille des ex-grains β est peu dispersée. En effet, une population de grains sphériques parfaitement monodispersés de grains de $2000 \mu\text{m}$ en 3D, donne un DCE moyen d'environ $1500 \mu\text{m}$ avec une étendue de l'ordre de $\pm 500 \mu\text{m}$ sur une coupe en 2D. Malgré cette dispersion, on n'observe pas de gradient le long du rayon. Les ex-grains β sont presque équiaxes avec un facteur de forme voisin de 0,7.

Quant aux lamelles α , elles ont un facteur d'allongement (longueur/largeur) de 4 à 10 selon les estimations expérimentales. Leur épaisseur varie le long du rayon mais ne change pas selon le plan d'observation par rapport au repère de la billette. En peau de la billette, l'épaisseur d'une lamelle est voisine de $4 \mu\text{m}$, à mi-rayon, elle est de $15 \mu\text{m}$ environ et au cœur de la billette elle est de l'ordre de $17 \mu\text{m}$.

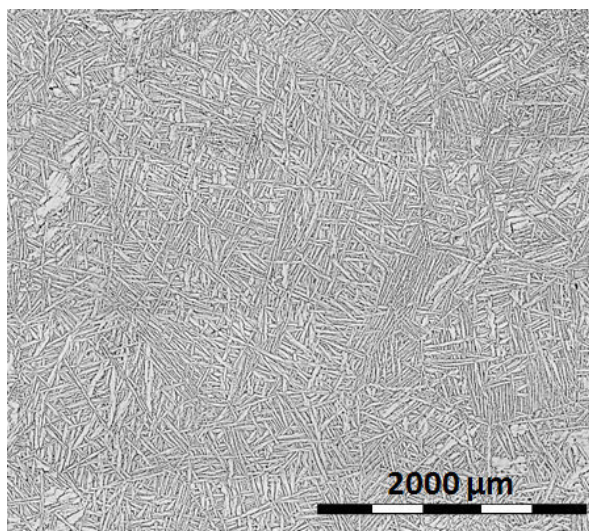


Figure IV-2 : Micrographie de la billette trempée (T)

Les caractères vannerie et platelets parallèles de la billette trempée sont mesurés à différents rayons et selon les trois directions du repère de la billette. Le résultat montre que la structure est essentiellement en vannerie avec un indice $\chi \approx 0,72$ pour l'axe central et à mi-rayon de la billette et 0,62 en peau. Par contre, la microstructure est homogène le long du rayon de la billette.

IV.1.2. Orientation des grains

Une trentaine d'ex-grains β sont analysés avec la méthode EBSD, le long du rayon afin d'observer l'orientation des variants présents à l'état initial. Une des façons les plus simples pour décrire les orientations des variants α est d'utiliser les facteurs de Kearns des plans $\{0001\}$. Les facteurs de Kearns dans les directions du repère de la billette sont respectivement K_r , K_θ et K_z . Les ex-grains β analysés ont une surface variant de 0,4 à 4 mm² et sont observés selon toutes les directions du repère de la billette. La moyenne standard c'est-à-dire la moyenne arithmétique isopondérée de chacun de ces facteurs de Kearns ($\overline{K_r}, \overline{K_\theta}, \overline{K_z}$) est représentée avec leur écart type en noir dans la Figure IV-3. En rouge sont représentées les moyennes des trois facteurs de Kearns pondérées ($\langle K_r \rangle, \langle K_\theta \rangle, \langle K_z \rangle$) par l'aire de l'ex-grain β . La comparaison des deux moyennes montre qu'il n'y a pas d'influence notable de la taille de l'ex-grain β sur l'orientation des lamelles α . Cependant les facteurs K_z sont, en général, légèrement inférieurs aux facteurs K_r , et K_θ et cela tout au long du rayon : K_r , et K_θ varient entre 0,20 et 0,53 alors que K_z varie de 0,10 à 0,44. L'évolution des facteurs de Kearns le long du rayon n'est pas notable.

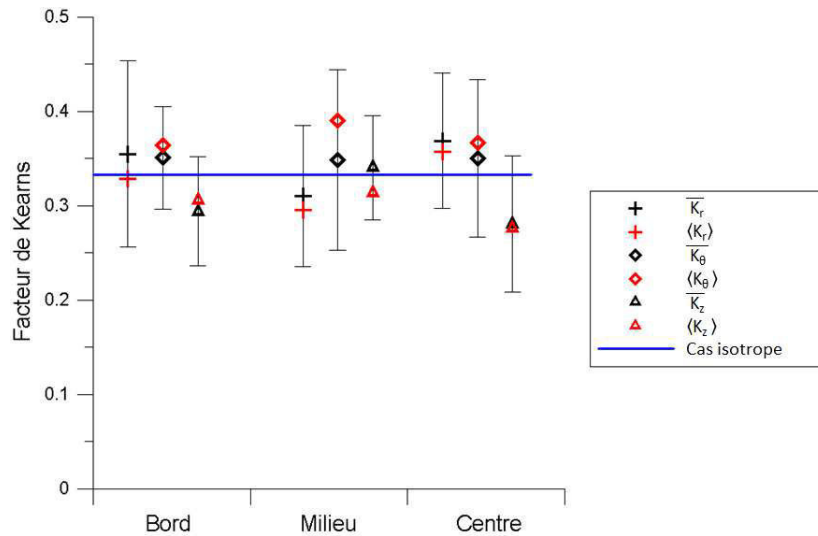


Figure IV-3 : Caractérisation de l'orientation des variants α au sein d'un ex-grain β pour une trentaine de grains β , à l'aide des facteurs de Kearns le long du rayon de la billette

D'autre part, plus de 70 ex-grains β choisis aléatoirement sont analysés pour vérifier l'isotropie du matériau dans les différentes directions d'observation. Selon celle-ci, la moyenne de chacun des trois facteurs de Kearns est calculée sans tenir compte de l'emplacement le long du rayon. De même que précédemment, en noir sont représentées les moyennes des facteurs de Kearns avec l'écart type correspondant et en rouge la moyenne pondérée par l'aire de l'ex-grain β (Figure IV-4). Les moyennes se situent autour du cas isotrope avec un facteur K_z légèrement inférieur aux deux autres et ceci dans toutes les directions d'observation. Encore une fois, les moyennes pondérées par l'aire sont proches des moyennes standards et donc la taille des ex-grains β n'influe pas significativement sur les facteurs de Kearns.

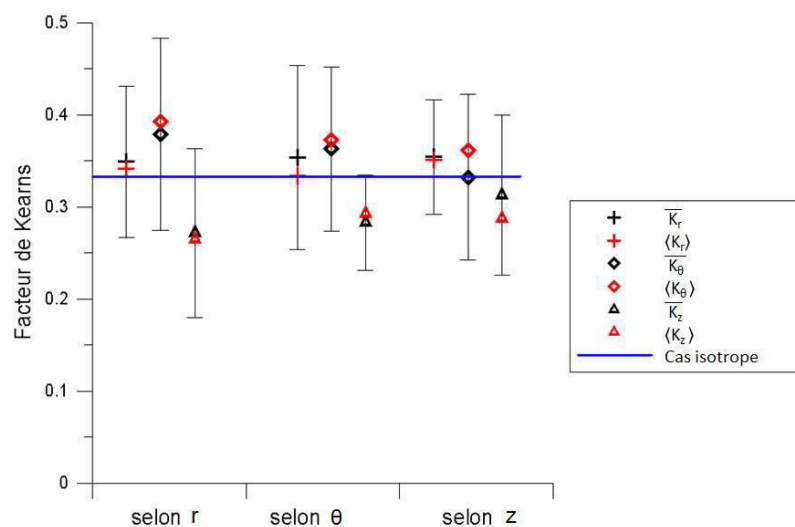


Figure IV-4 : Caractérisation de l'orientation des variants α au sein d'un ex-grain β à l'aide des facteurs de Kearns selon la direction d'observation

Les deux dernières figures indiquent que le matériau peut être considéré comme isotrope avec une légère tendance à l'orientation des axes c dans le plan transverse (r, θ) de la billette. Les facteurs de Kearns donnent une idée de l'orientation de la maille hexagonale par rapport au repère de la billette. Un facteur est introduit pour caractériser la sélection des variants, il est noté Q : il quantifie l'écart des fractions des axes c par rapport à celles du cas sans sélection.

$$Q = \sqrt{\frac{6}{5} \sum_{i=1}^6 \left(f_i - \frac{1}{6}\right)^2} \quad (\text{IV-1})$$

où les f_i sont les fractions volumiques associées aux 6 axes c .

$Q = 1$ si un seul axe c est présent au sein de l'ex-grain β et $Q = 0$ s'il n'y a aucune sélection. Un autre facteur peut être écrit sous une forme analogue, noté Q_{tv} , afin d'évaluer la sélection en prenant en compte les variants jumeaux.

$$Q_{tv} = \sqrt{\frac{12}{11} \sum_{i=1}^{12} \left(f_i - \frac{1}{12}\right)^2} \quad (\text{IV-2})$$

où les f_i désignent cette fois les fractions volumiques des 12 variants possibles.

Les fractions théoriques ont été calculées à l'aide du modèle de minimisation d'énergie élastique du système, détaillé dans le chapitre II, ne considérant que les pseudo-variants, c'est-à-dire les orientations des axes c . Les fractions, déterminées dans §II.2.3.a, permettent de déterminer le facteur théorique, noté $Q_{th}(i)$, correspondant aux cas comportant $i=1$ à 6 pseudo-variants. La Figure IV-5 représente les valeurs du facteur Q_{th} en fonction du nombre de pseudo-variants pris en compte dans le modèle, sans contrainte appliquée. Ils sont également représentés sur la Figure IV-6 par des lignes interrompues rouges.

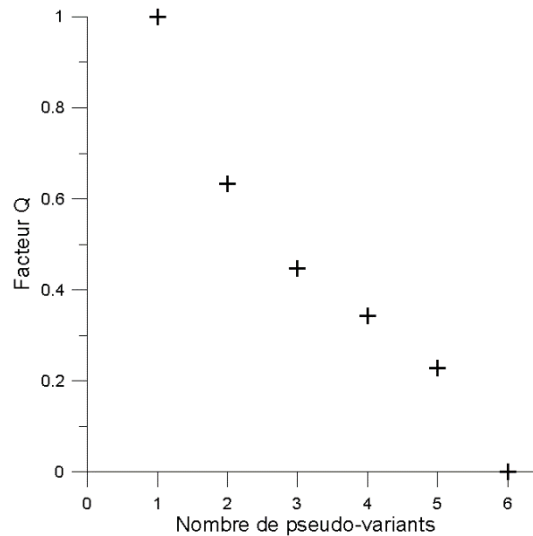


Figure IV-5 : Valeur de Q_{th} en fonction du nombre de pseudo-variants

Le calcul de ce facteur de sélection a été effectué sur environ 50 ex-grains β choisis aléatoirement au sein de la billette trempée, et ces facteurs sont comparés avec les valeurs théoriques (représentées par des traits pointillés en rouge) sur la Figure IV-6. Dans la plupart des cas, tous les variants α sont présents sauf de rares exceptions, cependant les proportions varient beaucoup et atteignent des valeurs très élevées ou au contraire très faibles.

Les moyennes des facteurs Q et Q_{tv} sont sensiblement égales, respectivement 0,25 et 0,26. Plus de 50 % des valeurs du facteur Q sont comprises entre les valeurs théoriques $Q_{th}(6)$ et $Q_{th}(5)$ et environ 70 % comprises entre $Q_{th}(6)$ et $Q_{th}(4)$. Quant aux Q_{tv} , environ 50 % des valeurs sont comprises entre les $Q_{th}(6)$ et $Q_{th}(5)$ et environ 80 % sont compris entre $Q_{th}(6)$ et $Q_{th}(4)$. Dans le cas général, on peut en conclure qu'il n'y a pas de sélection de variant à l'état initial étant donné que dans la majorité des cas, les facteurs de sélection sont relativement faibles. Le nombre d'ex-grains β étudiés expérimentalement n'est pas suffisant pour permettre d'analyser de manière statistique chacun des 6 cas de figures comme cela a été fait pour les valeurs théoriques de $\|\epsilon\|^2$ présentées sur la figure II-8 théorique du chapitre II.

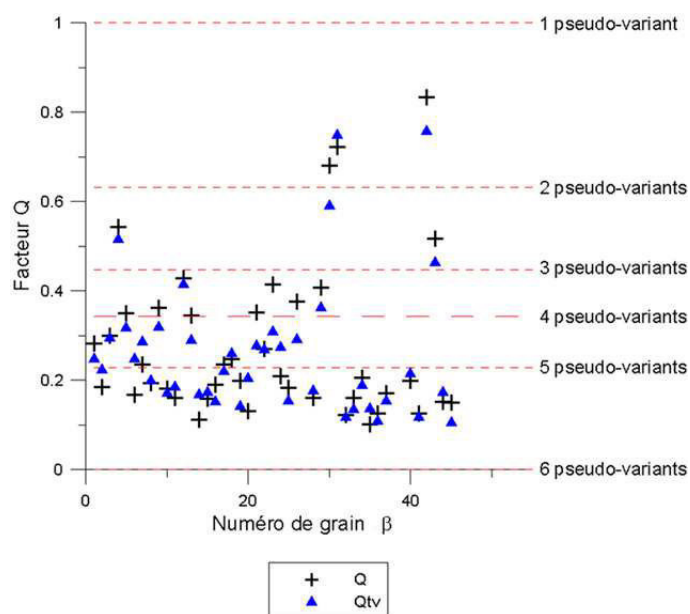


Figure IV-6 : Comparaison des facteurs de sélection déduits des mesures avec les valeurs théoriques

IV.2. Influence des traitements thermiques

Dans la section qui suit, une série d'essais est présentée pour mettre en évidence les influences des traitements thermiques sur la microstructure. Tout d'abord, la détermination d'une loi de croissance des grains β en fonction du temps de maintien dans le domaine β (1050 °C) est exposée, notamment avec la mise en évidence de l'effet de la double trempe. Ensuite nous précisons les paramètres qui influencent les caractères morphologiques de la microstructure de trempe. Enfin nous mettons en évidence l'effet de la vitesse de la première trempe sur la croissance des grains β et son influence sur les facteurs de Kearns et de sélection.

IV.2.1. Cinétique de la croissance des grains β

La cinétique de croissance est étudiée en portant dans le domaine β , puis en trempant après des maintiens de plus en plus longs, des éprouvettes issues de deux états du matériau : brut de forge et « trempé industriellement ». Les résultats sur l'état brut de forge figurent dans la première sous-sous-section, ceux sur l'état trempé industriellement, dans la 2°. Puis, dans la 3°, nous comparons les lois de croissance de la taille des grains β . Enfin, dans la dernière, nous traitons de l'effet de la double trempe.

a. État brut de forge

La Figure IV-7 regroupe les distributions des diamètres moyens des ex-grains β .

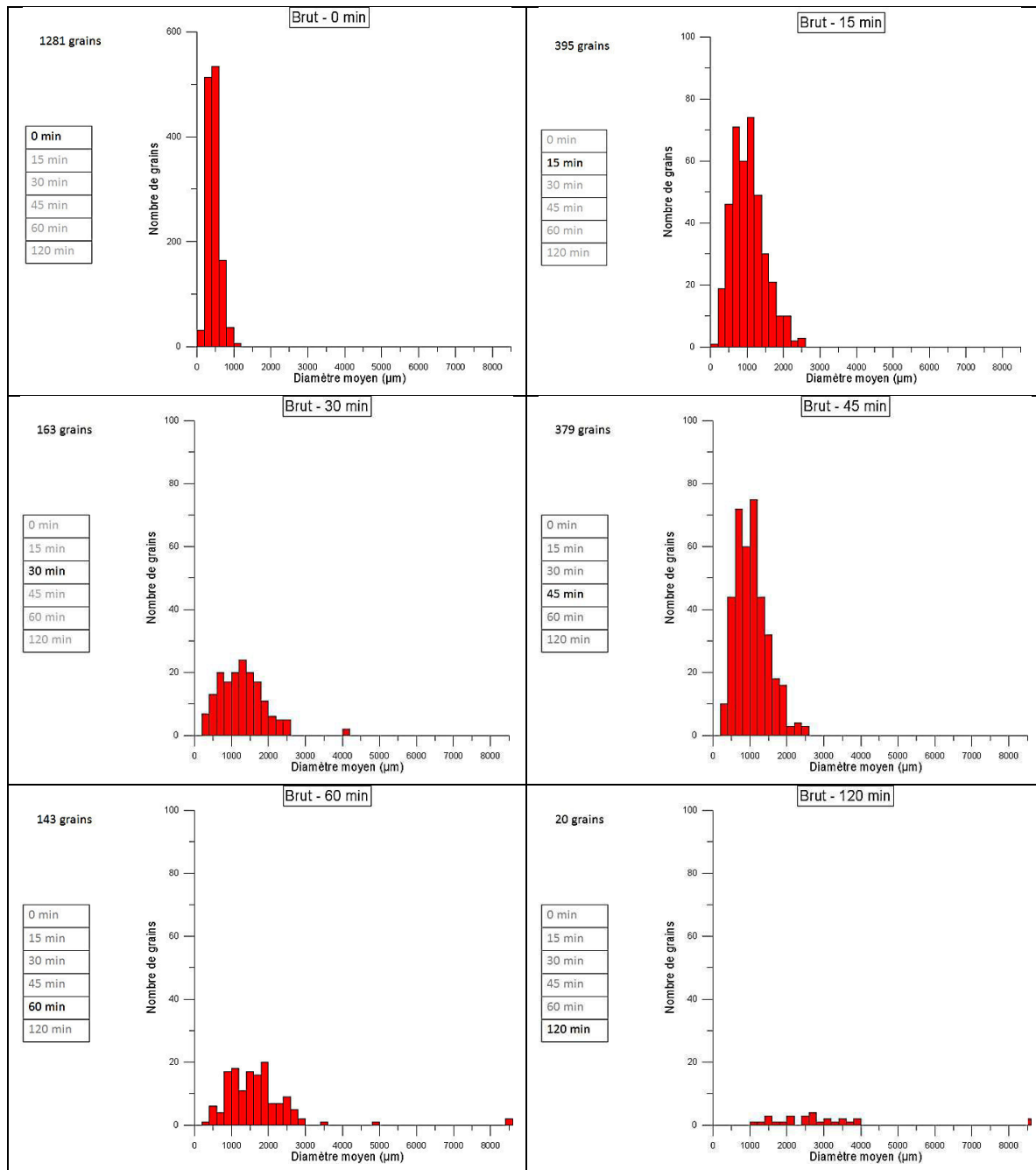


Figure IV-7 : Distribution de la taille des grains β en fonction du temps de maintien à $\theta = 1050\text{ }^{\circ}\text{C}$ - État de départ brut de forge

Il est à noter que seuls les grains non coupés sont pris en compte ce qui sous-estime les tailles moyennes. Il est bien évident que plus le temps de maintien est élevé plus les grains β sont gros, donc moins ils sont nombreux sur la surface observée. Par exemple, après 120 min de maintien, seuls vingt ex-grains β ont pu être mesurés malgré un échantillon de trois champs de $2 \times 1\text{ cm}^2$. De plus la distribution des diamètres équivalents correspondant à ce cas n'est pas significative car les gros grains dépassent largement la surface observée et donc seuls les plus petits sont visibles. La distribution s'élargit progressivement.

Les diamètres moyens pondérés par l'aire des six durées de maintien analysées ont été portés sur la Figure IV-8 en fonction du temps de maintien. Puis une loi de croissance de la forme $d^n - d_0^n = kt$ a été ajustée aux points expérimentaux à l'aide de la méthode des moindres carrés. Le point à 45 min, apparaissant comme aberrant, n'a pas été pris en compte. L'exposant n est égal à 2,78 (en intégrant le point à 45 min il serait de 2,32) et le paramètre k est égal à $3,25.10^7 \mu\text{m}^n.\text{min}^{-1}$.

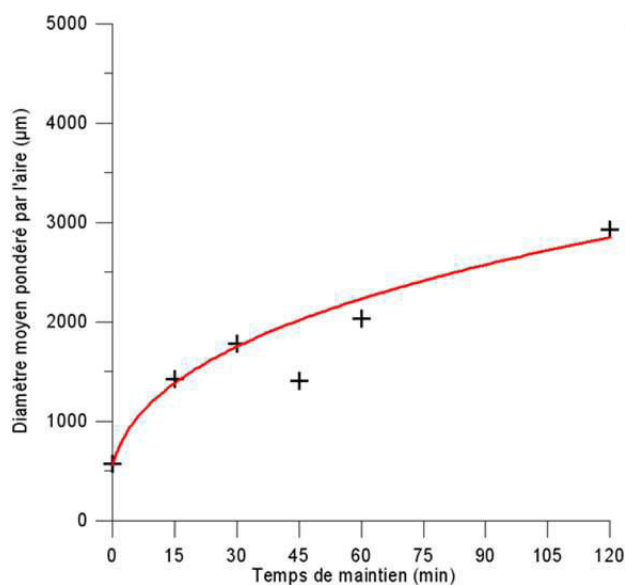


Figure IV-8 : Loi de croissance de la taille moyenne des grains β du Zy-4 brut de forge à $\theta = 1050^\circ\text{C}$

Le diamètre moyen pondéré par l'aire évolue à partir d'environ $500 \mu\text{m}$ (résultat obtenu sur un millier de grains) en passant par $2000 \mu\text{m}$ (résultat obtenu sur 150 grains) après une heure de maintien. Et il continue à augmenter au-delà.

b. État « trempé industriel »

Les conditions expérimentales correspondantes à cet état sont détaillées dans le §III-1.

Les distributions des diamètres moyens pondérés par l'aire en fonction du temps de maintien à 1050°C sont rassemblées sur la Figure IV-9. Comme précédemment, elles sont d'autant plus étalées que le maintien est long. En comparaison avec l'état brut de forge, ces distributions apparaissent très hétérogènes. Il est difficile de conclure ; en effet, le nombre de grains est nettement moindre qu'à l'état brut de forge car les grains ont déjà recristallisé pendant le maintien avant la « trempe industrielle ». La Figure IV-10 montre la loi de croissance de la taille moyenne des grains β de l'état « trempé industriellement ». Au-delà d'une certaine taille critique, les grains β croissent tellement que la surface d'observation devient l'élément limitant. Dans le cas présent, au-delà de 45 min, la taille des grains est

largement sous-évaluée car nous n'avons comptabilisé que les petits grains entièrement sur la surface observée.

Le diamètre moyen pondéré par l'aire à $t = 0$ est d'environ $1800 \mu\text{m}$ ce qui correspond à 30 min de maintien à partir de l'état brut de forge. Cette durée correspond au temps de maintien de l'opération de trempe industrielle. Les paramètres n et k de la loi de croissance sont respectivement 3,12 et $2.10^9 \mu\text{m}^n \cdot \text{min}^{-1}$.

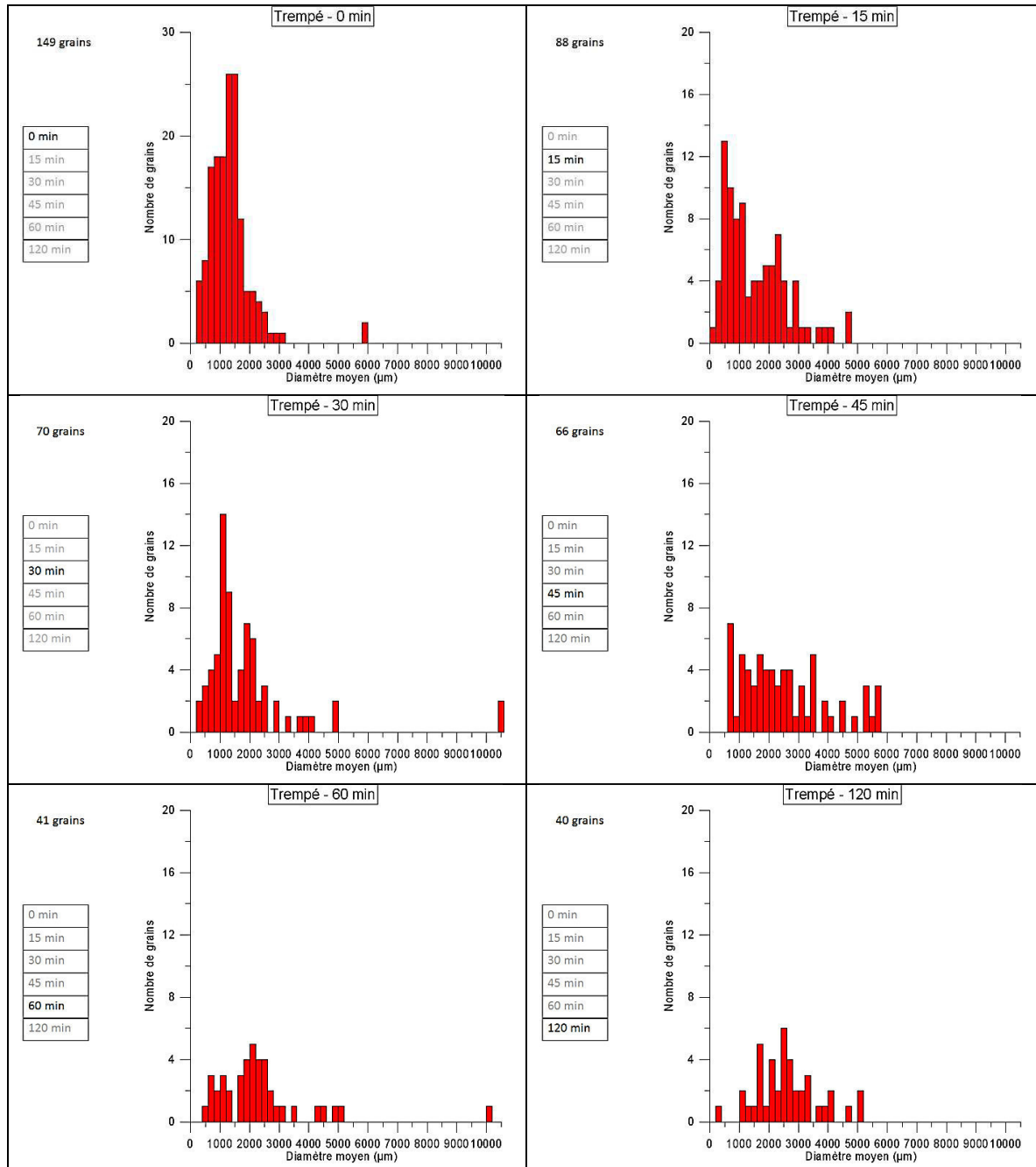


Figure IV-9 : Distribution du diamètre équivalent des grains β en fonction du temps de maintien à $\theta = 1050 \text{ }^\circ\text{C}$ - État de départ « trempé industriellement »

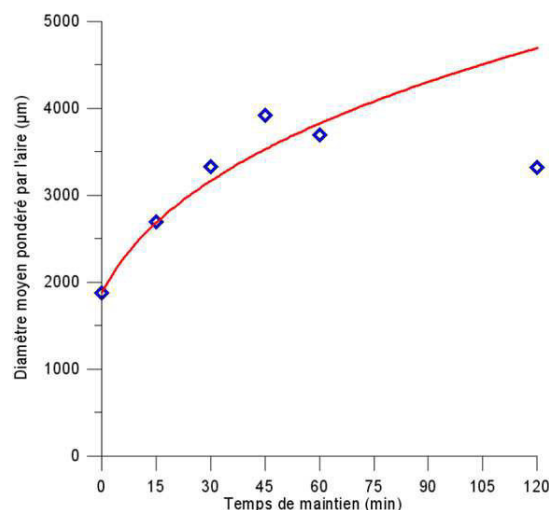


Figure IV-10 : Loi de croissance de la taille moyenne des grains β du Zy-4 « trempé industriellement » à $\theta = 1050\text{ }^{\circ}\text{C}$

c. Comparaison des lois de croissance en fonction du temps de maintien

Les deux états présentés ci-avant ne suivent pas exactement la même loi de croissance. Leurs cinétiques ne sont pas directement comparables étant donné que la puissance n n'est pas la même. Cependant les deux puissances sont, toutes les deux, proches de 3. Nous nous proposons donc d'imposer $n = 3$ afin de comparer les deux lois de croissance sur la Figure IV-11.

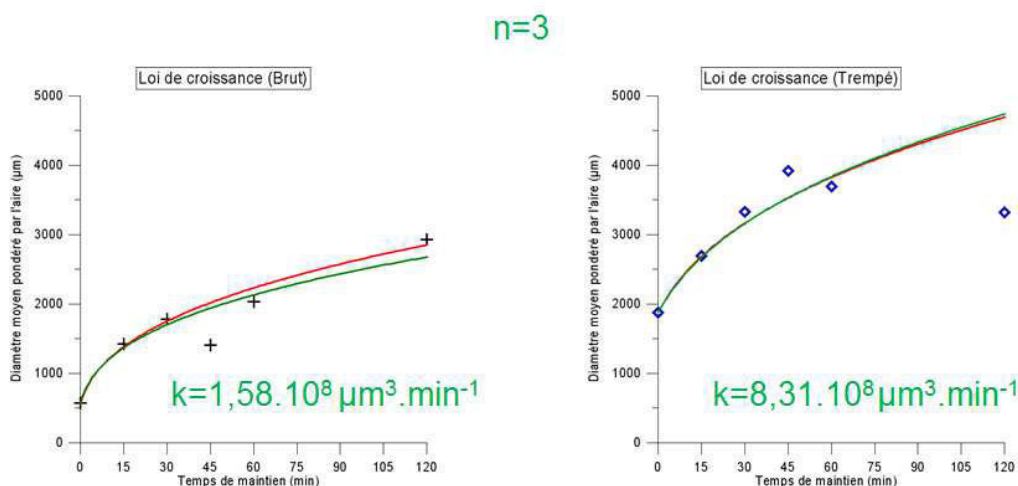


Figure IV-11 : Comparaison des lois de croissance avec $n=3$ (à $\theta = 1050\text{ }^{\circ}\text{C}$). Les courbes en rouge correspondent à la loi initialement déterminée et les courbes en vert désignent la nouvelle loi de croissance avec n fixé à 3.

Sans préciser les incertitudes expérimentales, les différences entre les anciens et les nouveaux ajustements ne nous apparaissent pas significatives. Nous retenons ainsi l'exposant 3 avec pour l'état brut de forge $k=1,58 \cdot 10^8 \mu\text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ et pour l'état trempé $k=8,31 \cdot 10^8 \mu\text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$.

Selon Burke et Turnbull [1], la croissance de grains doit suivre une loi avec $n = 2$ mais ils ont reconnu que pour diverses raisons possibles, il apparaît fréquemment que n est supérieur à 2 dans les expériences. A titre indicatif, un exposant 3 est prévu pour le mécanisme du mûrissement d'Oswald des précipités s'il est contrôlé par la diffusion en volume et un exposant de 4 s'il est contrôlé par la diffusion aux joints de grains.

La vitesse de croissance des grains β à l'état « trempé industriel » est donc cinq fois supérieure à celle des grains β à l'état brut de forge. Cela signifie que la sévérité de la trempe a une influence après chauffage (à $\theta = 1050$ °C) sur la croissance des grains β .

d. Effet d'une double trempe

Suivant la pratique industrielle, quand une trempe « lente » est suivie d'un chauffage jusqu'au domaine β , les grains β croissent beaucoup alors que dans le cas où une trempe « rapide » est suivie d'un chauffage jusqu'au domaine β , on n'observe qu'un grossissement faible. En partant de l'état brut de forge, le phénomène de croissance excessive dû à la double trempe a été reproduit en laboratoire. Après chaque traitement thermique (détaillé dans le chapitre précédent), la mesure de la taille des grains β a été effectuée par analyse d'images prises au microscope optique. La Figure IV-12 présente, pour chaque traitement thermique, le diamètre moyen pondéré par l'aire des grains β .

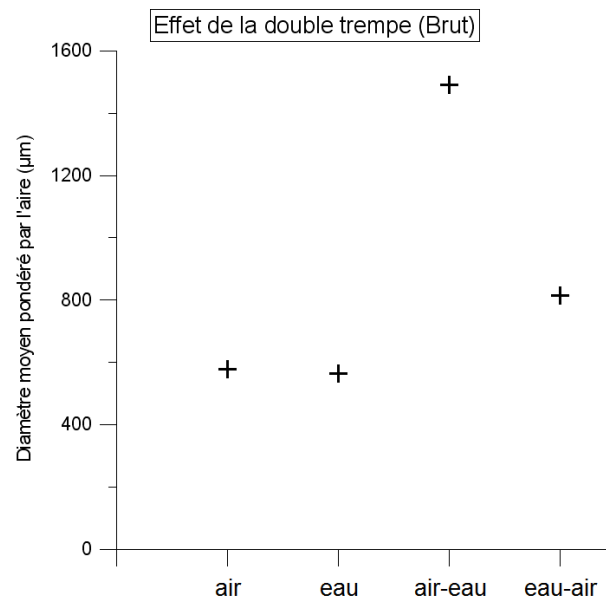


Figure IV-12 : Diamètre pondéré par l'aire des grains β après chaque traitement thermique : trempe air ; trempe eau ; trempe air + trempe eau ; trempe eau + trempe air

On peut observer sur la Figure IV-12 que la taille des grains β des échantillons refroidis une première fois par l'air et par l'eau est similaire (la trempe à l'eau étant plus rapide que la trempe à l'air). Concernant les doubles trempes, l'échantillon ayant subi un refroidissement

rapide suivi d'un refroidissement lent n'a pas vu la taille des grains augmenter considérablement. En revanche, un refroidissement lent suivi d'un refroidissement rapide a entraîné une croissance excessive des grains β . Selon la logique causale, c'est la sévérité de la première trempe qui distingue les deux cas.

Les indices χ (quantification des caractères vannerie et platelets parallèles) ont été calculés pour chacun des cas mentionnés et sont présentés sur la Figure IV-13. Les deux premiers points correspondent aux trempes simples (eau et air), les deux derniers aux doubles trempes (air-eau et eau-air). Les indices χ montrent qu'une double trempe n'a aucune influence sur la morphologie, seule la dernière trempe importe.

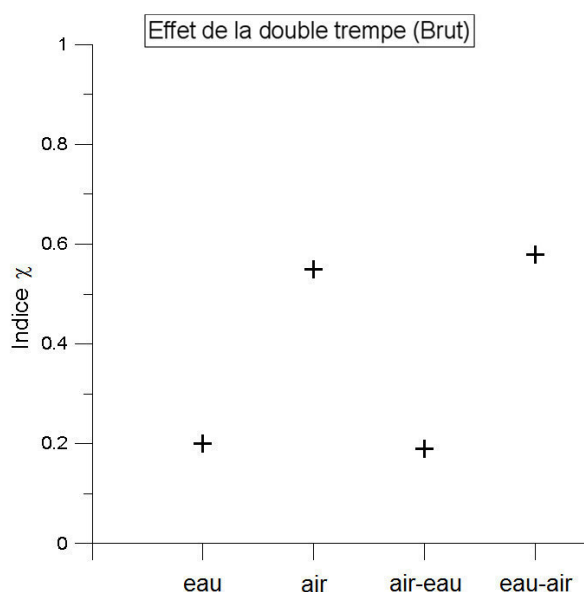


Figure IV-13: Effet de la double trempe sur l'indice χ

L'épaisseur des lamelles α est de l'ordre de 1 μm pour la trempe rapide et de 4,5 μm pour une trempe lente. De plus, le caractère vannerie est plus prononcé pour la microstructure issue d'une trempe à l'air ($\chi \approx 0,5$) que pour une microstructure résultant d'une trempe à l'eau ($\chi \approx 0,2$), la germination à l'intérieur des grains (vannerie) étant favorisée par la sévérité de la trempe.

L'effet de la double trempe a déjà été observé dans l'étude de la croissance des grains β décrite plus haut. L'état « trempé industriellement » est comparable à un refroidissement lent, ce dernier est suivi d'une trempe effectuée en laboratoire qui est plus rapide. En effet, une trempe industrielle réalisée sur une billette d'environ 200 mm de diamètre est moins rapide qu'une trempe à l'eau en laboratoire effectuée sur une éprouvette de 100×20×10 mm³. Les points expérimentaux (en bleu et en noir) de la Figure IV-11 sont ainsi rassemblés dans un même graphe (Figure IV-14) : l'essai A consiste à partir d'un état brut de forge suivi d'un chauffage lent puis d'une trempe à l'eau après un temps de maintien (t) à 1050 °C ; l'essai B suit la même procédure mais à partir d'un état « trempé industriellement ». Or le cas de l'état

« trempé industriellement » à $t=0$ a été trouvé comparable à l'état brut de forge maintenu pendant 30 min à 1050 °C, l'essai B est donc décalé de 30 min sur les graphes de la Figure IV-14. De cette manière, il est aisé d'observer à nouveau que la croissance est beaucoup plus rapide à partir de l'état initial « trempé industriellement ».

Les points à 120 min de l'état « trempé industriel » sont écartés car sous-estimés à cause des grains coupés au bord, ainsi que le point à 45 min, pour l'état brut de forge, considéré comme aberrant.

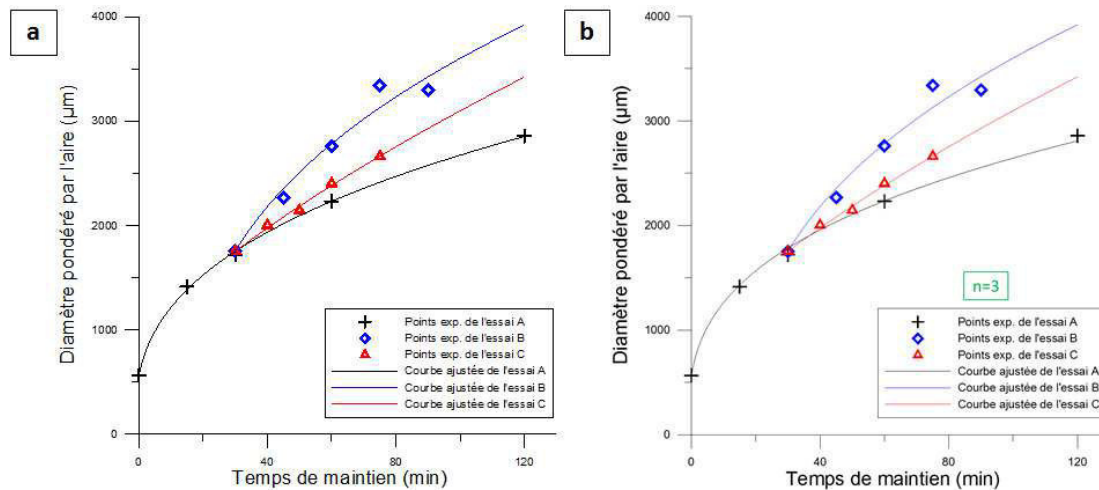


Figure IV-14 : Évolution de la taille des grains β à 1050 °C pour les trois états de départ. Essai A : « brut de forge », essai B : « trempé industriellement » suivi d'un réchauffage lent et essai C : « trempé industriellement » suivi d'un réchauffage rapide. Dans les trois essais, les échantillons sont trempés une seconde fois à l'eau après un temps de maintien à 1050 °C ; a) ajustement par la méthode des moindres carrés des paramètres n et k ; b) ajustement par la méthode des moindres carrés du paramètre k et en fixant $n=3$

Dans le chapitre III §1.1.c, nous avons déjà avancé qu'un chauffage assez rapide favorise la germination de nouveaux grains et donc limite la croissance des grains. Les sites de germination sont alors les SPP, enrichies en éléments bêtagènes, qui décorent les joints entre lamelles α . Une campagne d'essai de chauffage rapide a été menée à partir de l'état « trempé industriellement », il s'agit de l'essai C. Les résultats, aussi décalés de 30 min, concernant la croissance des grains β sont présentés sur la Figure IV-14 en rouge. Les paramètres k et n optimisés de la loi de croissance sont présentés dans le Tableau IV-1.

Tableau IV-1 : Paramètres n et k optimisés lors de l'ajustement des courbes par la méthode des moindres carrés

	Essai A	Essai B	Essai C
k ($\mu\text{m}^n \cdot \text{min}^{-1}$)	$3,25 \cdot 10^7$	$1,18 \cdot 10^7$	$2,55 \cdot 10^3$
n	2,8	2,5	1,6

Sur la Figure IV-14b, les courbes sont toujours ajustées par la méthode des moindres carrés en ne faisant varier que le paramètre k et en imposant $n = 3$. Les paramètres k optimisés par la méthode des moindres carrés sont présentés dans le Tableau IV-2.

Tableau IV-2 : Paramètres k optimisés lors de l'ajustement des courbes par la méthode des moindres carrés avec $n=3$

	Essai A	Essai B	Essai C
$k (\mu\text{m}^3.\text{min}^{-1})$	$1,58.10^8$	$5,58.10^8$	$2,79.10^8$
n	3	3	3

Les deux types d'ajustement semblent être similaires. Cependant, il est plus aisé de comparer les trois essais entre eux quand n est fixé. Le paramètre k de l'essai B est supérieur à celui de l'essai A : après une première trempe lente, les grains β croissent vite. Cependant, le paramètre k de l'essai C est inférieur à celui de l'essai B : malgré une première trempe lente, avec un second chauffage rapide, la croissance des grains β est fortement diminuée, ce qui valide notre hypothèse initiale que la croissance de la taille moyenne des grains est freinée par la germination des grains β , elle-même favorisée par la rapidité de la montée en température. En conclusion, la croissance exagérée des grains β est due à une trempe lente suivie d'un chauffage lent. Autrement dit, lorsque la trempe n'est pas assez rapide il faut chauffer rapidement pour éviter cette croissance exagérée des grains β .

IV.2.2. Paramètres influençant les caractères morphologiques

Tout d'abord, il est important de montrer que l'indice χ introduit auparavant évolue bien en fonction du type de microstructure. À cette fin, « trois microstructures types » ont été sélectionnées et sont présentées sur la Figure IV-15.

Les micrographies sont classées de a à c en fonction d'une structure majoritairement en vannerie jusqu'à une structure majoritairement en platelets parallèles. Ces micrographies ont été prises avec les grossissements $\times 25$ et $\times 100$ pour valider l'indépendance avec le grossissement. Pour balayer la même plage que le grossissement $\times 25$, une douzaine d'images en $\times 100$ est nécessaire. La Figure IV-16 présente l'indice χ calculé sur les trois images $\times 25$ ainsi que les moyennes et les écarts-types des trois séries d'images prises en $\times 100$.

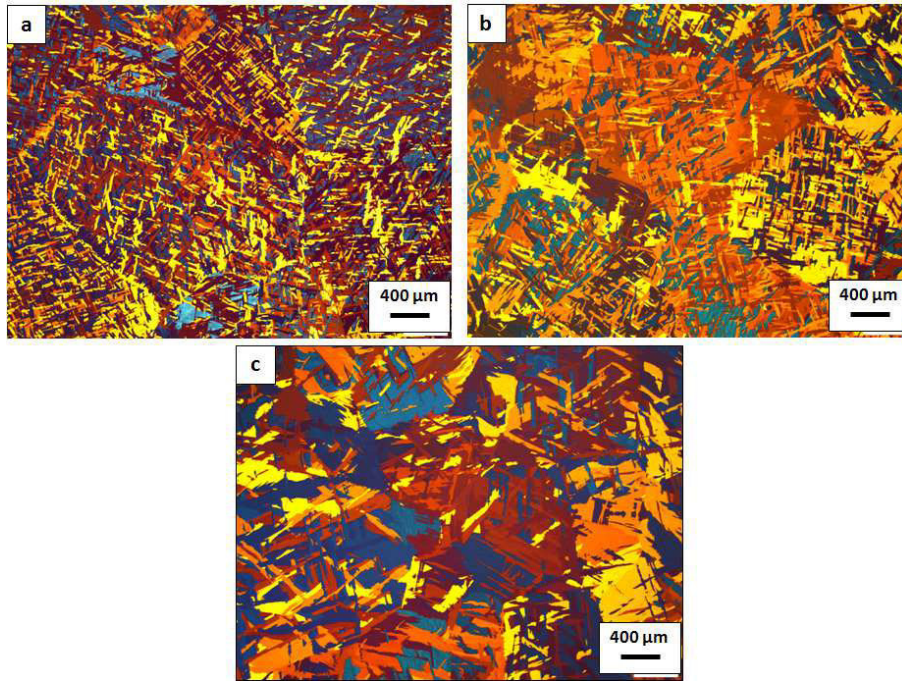


Figure IV-15 : Trois types de microstructures différents de Zy-4 en microscopie optique en lumière polarisée

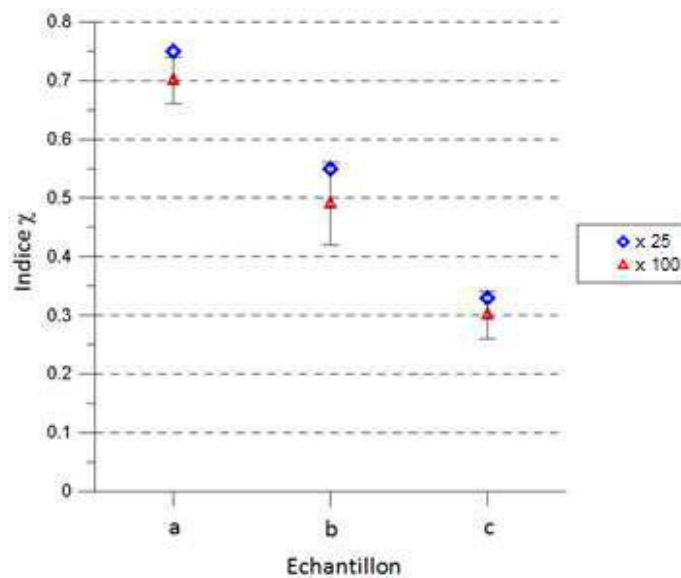


Figure IV-16 : Évolution de l'indice χ moyen en fonction de la microstructure, les barres d'erreurs figurent les écarts types des séries des 12 mesures du grandissement $\times 100$ et non l'incertitude sur la moyenne de χ sur ces 12 images.

Premièrement, les indices mesurés à partir des micrographies $\times 25$ sortent peu de la marge d'erreur des indices calculés à partir des clichés $\times 100$. Le choix du grandissement entre $\times 25$ et $\times 100$ n'a donc pas une influence marquée sur l'indice χ obtenu.

Deuxièmement, l'indice diminue avec l'augmentation du caractère platelets parallèles ; en effet, il diminue de 0,75 pour l'image a, à 0,5 pour l'image b et enfin à 0,3 pour l'image c. L'indice caractérise donc bien la morphologie des lamelles α .

a. Effet de la vitesse de trempe

Des séries de micrographies ont été observées sur des échantillons des produits plats de Zy-4 ayant subi des trempes à différentes vitesses. Cinq vitesses sont étudiées dans ce paragraphe : 12,8 ; 17 ; 30,4 ; 46 et 103 °C.s⁻¹. Les micrographies (séries de 10 images pour chaque échantillon et chaque grandissement) ont été prises très près du bord ainsi qu'au centre de l'échantillon et à un grandissement de $\times 50$ et $\times 200$. Une micrographie de chaque échantillon prise en $\times 50$ est montrée sur la Figure IV-17 ainsi que les indices χ calculés après traitement des images et leurs écarts-types respectifs. Il faut noter que la fiabilité de l'indice χ dépend beaucoup du grandissement choisi. Il a fallu trouver un compromis entre un résultat suffisamment statistique et la précision, comme déjà indiqué dans le §III.2.3.iii.

Tout d'abord, nous pouvons observer que les mesures de χ aux deux grandissements sont significativement différentes. Il est rappelé ici que les barres d'erreurs représentent les écarts types des séries de 12 mesures et non l'incertitude sur la moyenne de χ sur les 12 images.

Quand la trempe est rapide, les lamelles sont extrêmement fines, il faut donc un grandissement relativement élevé afin que le traitement d'image puisse détecter correctement les joints entre lamelles. Cependant, pour que le résultat soit statistique il faudrait un nombre considérable de micrographies et cela n'est pas envisageable en entreprise. Suivant cette remarque, les micrographies des échantillons trempés à 46 et 103 °C.s⁻¹ présentent des aiguilles de l'ordre du micromètre, le grandissement $\times 50$ n'est donc pas adapté, et ainsi les deux derniers points bleus ne sont pas fiables. Le résultat relatif à l'échantillon trempé à 46 °C.s⁻¹ au grandissement $\times 200$ présente un écart-type élevé dû à la forte hétérogénéité de la microstructure. La Figure IV-18 présente deux plages d'observation : la micrographie de gauche présente à certains endroits une structure très fine en vannerie, alors que celle de droite montre des petits paquets de lamelles. Il va sans dire que l'indice χ diffère beaucoup entre ces deux microstructures, d'où l'écart type élevé.

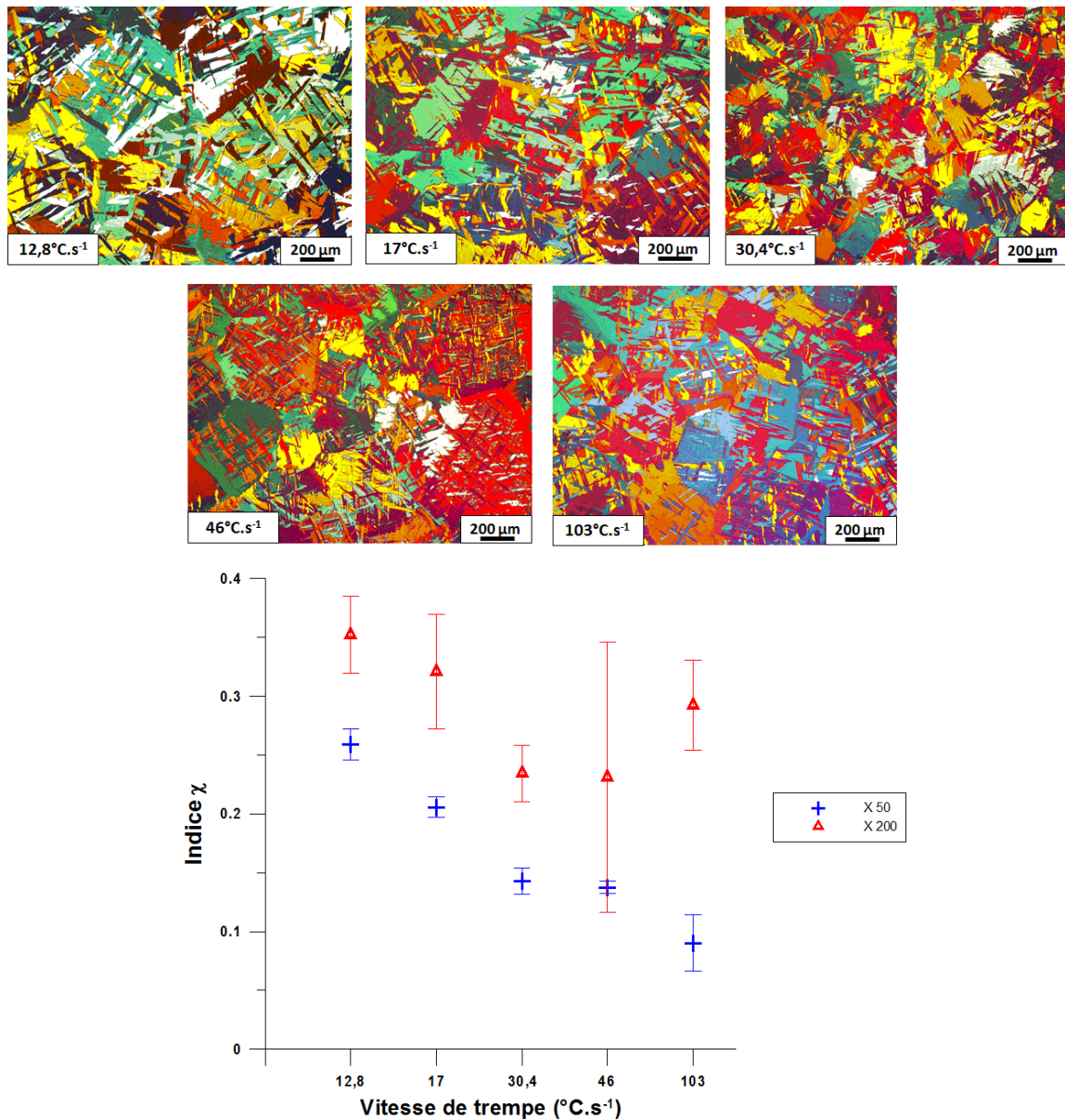


Figure IV-17 : Indice morphologique en fonction de la vitesse de trempe déterminé à deux grossissements différents

Les résultats montrent que les indices χ calculés pour les différentes vitesses de trempe varient entre 0,15 et 0,35, ce qui signifie que la microstructure est en général pour ces échantillons, plutôt en platelets parallèles. L'influence de la vitesse de trempe n'est pas notable. Une tendance se dégage cependant des trois premières vitesses pour lesquelles l'indice diminue légèrement quand la vitesse de trempe augmente. Ce résultat va cependant à l'encontre des résultats trouvés dans la bibliographie [2].

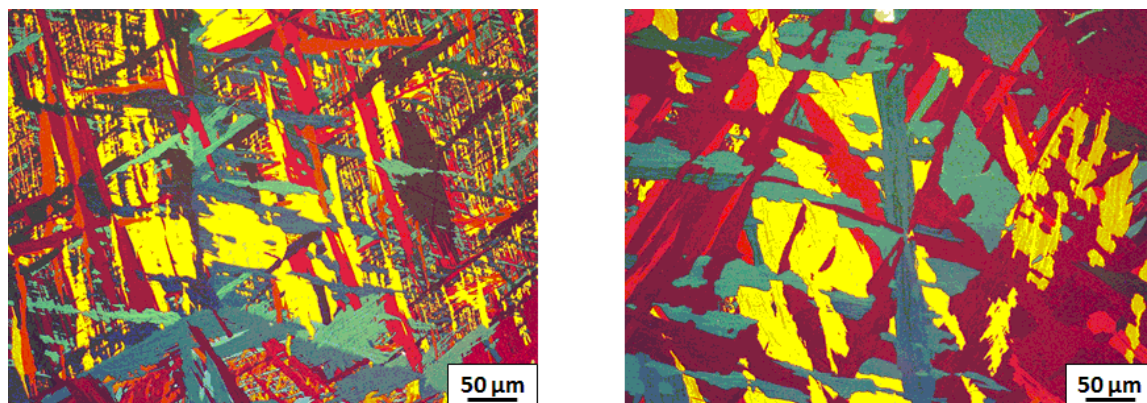


Figure IV-18 : Hétérogénéité morphologique de l'échantillon trempé à 46 °C.s⁻¹

L'explication pourrait venir d'une faible fraction de SPP (peu de sites de germination) ou alors le fait d'augmenter la vitesse de trempe, cela aurait décalé la température de transformation en l'abaissant. A priori, cela conduirait à une diminution de la plasticité de transformation et une augmentation de la contrainte induite par la trempe.

b. Effet d'une trempe sur le caractère morphologique dans chaque grain β

Pour observer l'effet d'une trempe grain β par grain β , une dizaine d'ex-grains β ont été repérés sur différents échantillons prélevés dans une billette trempée après forgeage. Une analyse EBSD a été effectuée sur chacun de ces ex-grains β à l'état initial puis après une trempe réalisée en laboratoire (trempe de 27 °C.s⁻¹) dans les conditions spécifiées au chapitre III. L'analyse EBSD donne directement la longueur λ des joints entre colonies de lamelles au sein de l'ex-grain β . Les indices χ sont alors calculés à partir de ces valeurs et de la surface des ex-grains β . La comparaison des indices χ avant et après trempe est présentée sur la Figure IV-19 : en abscisse sont portées les valeurs des indices χ à l'état initial et en ordonnée, les valeurs correspondantes après trempe.

Le caractère morphologique prédominant des ex-grains β analysés est la vannerie (indice χ supérieur à 0,5). La comparaison entre l'état initial et l'état après trempe montre que ce caractère vannerie tend à diminuer lors de la trempe réalisée. En effet, dans sept cas sur dix les points se situent au-dessous de la bissectrice des axes.

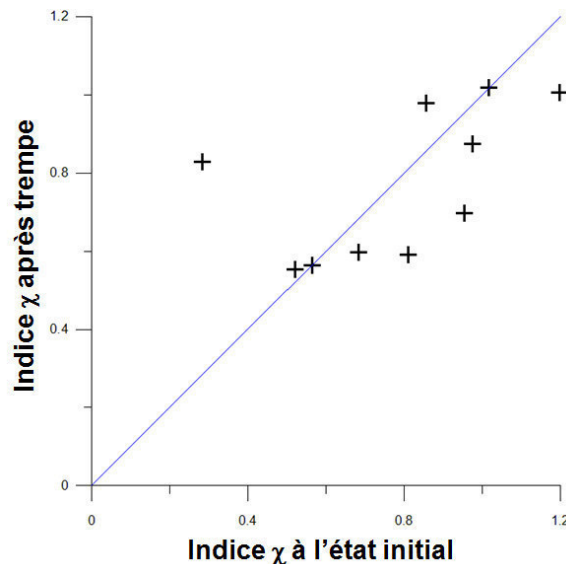


Figure IV-19 : Effet d'une trempe sur la morphologie de grains β individuels. La bissectrice des 2 axes est tracée à titre informatif.

Cet effet de la trempe a été observé en extrême surface des éprouvettes. Qu'en est-il dans le volume de celles-ci ? Les éprouvettes ayant subi une trempe ont été découpées au fil selon le schéma de la figure III-25 de la sous-section §III-3-4. Il n'est évidemment pas possible d'établir une comparaison avec l'état initial de ces grains, situés à l'intérieur du volume de l'échantillon. Une dizaine d'ex-grains β ont été étudiés sur la surface découpée à 2 mm du bord et une vingtaine sur la surface découpée au centre. Les moyennes des indices χ des ex-grains β présents sur ces deux surfaces sont respectivement 0,92 et 0,81. Contrairement à la peau des éprouvettes, à cœur, cette trempe conduit donc à une structure majoritairement en vannerie.

c. Effet d'une contrainte imposée pendant la trempe sur le caractère morphologique

Des éprouvettes ont été chauffées à l'aide d'un four à induction puis ont été soumises pendant la trempe à une faible contrainte (voir §III.1-3-b). Trois de ces éprouvettes ont été soumises à une déformation élastique en traction et trois autres en compression. Les six éprouvettes ont été ensuite découpées dans la section, au milieu de l'éprouvette afin d'être analysées par l'EBSD. Ces analyses permettent entre autres d'obtenir la longueur des joints entre colonies de lamelles et donc de calculer les indices χ associés. La moyenne des indices χ calculée sur les sections des éprouvettes déformées en traction est de 0,98 et celle des éprouvettes déformées en compression est de 0,97. L'indice χ élevé (vannerie) est cohérent avec la sévérité de la trempe réalisée dans ces expériences (associées à la chauffe rapide par induction)

Les caractères morphologiques sont donc majoritairement en vannerie et ne diffèrent pas selon le mode de contrainte.

IV.2.3. Effet des traitements thermiques et thermomécaniques sur la sélection des variants

Les paramètres influençant la sélection des variants mis en évidence dans ce projet sont la trempe et une contrainte inférieure à la limite d'élasticité appliquée pendant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$. Un suivi des grains en surface permet tout d'abord de mettre en évidence l'effet de la trempe, puis cette étude est complétée par une caractérisation en volume. Quant à l'influence de la contrainte appliquée lors du refroidissement, elle est mise en évidence au moyen des essais de traction et de compression dans un four à induction, déjà décrits plus haut.

a. Effet de la trempe en surface

Une dizaine d'ex-grains β ont été analysés par la méthode EBSD afin d'étudier l'effet de la trempe. Un exemple de figures de pôles $\{0001\}$ réalisées au sein d'un ex-grain β avant et après trempe est montré sur la Figure IV-20. La Figure IV-20a représente l'état initial : y sont indiqués en vert les pourcentages des trois axes c majoritaires pour une surface de l'ex-grain β étudié. La Figure IV-20b représente l'état du même grain après trempe dont les trois axes c majoritaires sont indiqués en rouge. La normale à la surface trempée est indiquée par son indice de Miller dans le repère du grain β parent et le facteur de Kearns de la normale, K_n , est indiqué pour chacun des cas.

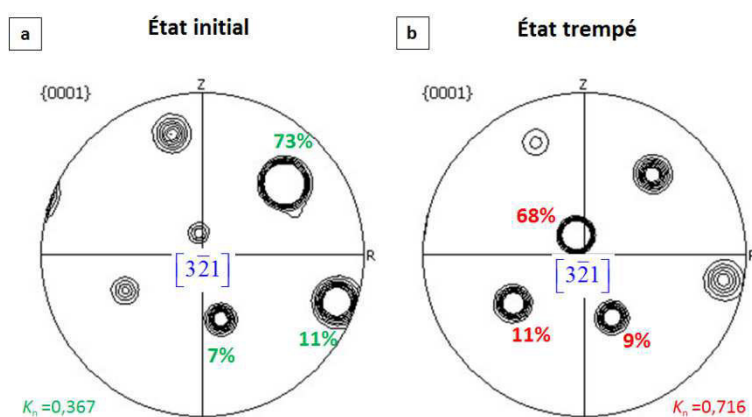


Figure IV-20 : Exemple d'un ex-grain β analysé, figure de pôles $\{0001\}$ avant la trempe ; b) après la trempe

L'orientation du grain β parent est conservée après trempe. Les axes c majoritaires, cependant, ne sont plus les mêmes, les axes c proches de la normale étant plus fortement

représentés après trempe. Ce phénomène est aussi mis en évidence par l'augmentation du facteur de Kearns de la normale après trempe.

La même méthode a été renouvelée avec les autres ex-grains β étudiés. La surface des ex-grains β étudiés varie entre 0,2 et 5,8 mm², et l'épaisseur des lamelles varie entre 8 et 10 μ m.

Les facteurs K_n après trempe sont portés en fonction de ces mêmes facteurs avant trempe pour chacun des ex-grains β sur la Figure IV-21a. De même, les facteurs de sélection Q et Q_{tv} , définis en §IV.1-3, sont portés sur la Figure IV-21b avec en noir les facteurs Q et en bleu, les facteurs Q_{tv} .

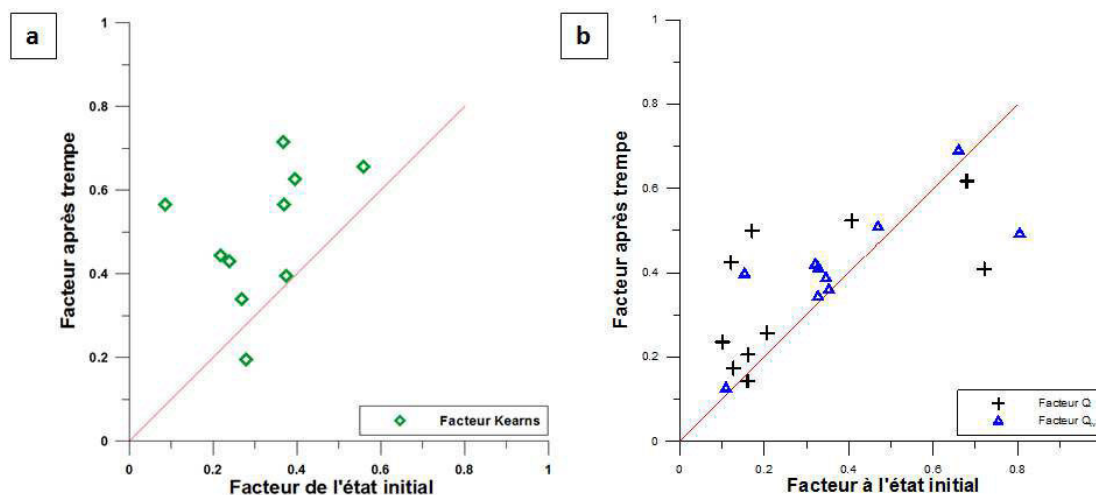


Figure IV-21 : Comparaison des facteurs de Kearns de la normale, et des facteurs de sélection Q et Q_{tv} des ex-grains β avant et après trempe en surface

Dans neuf cas sur dix, le facteur de Kearns a augmenté avec la trempe. Quant aux facteurs de sélection des axes c, dans sept cas sur 10 le facteur Q a augmenté avec la trempe. Enfin, si l'on considère les douze variants (facteur Q_{tv}) dans neuf cas sur dix, le facteur de sélection a augmenté avec la trempe. Globalement, les facteurs de Kearns, Q et Q_{tv} ont crû sous l'effet de la trempe, ce qui se traduit par une tendance nette à la sélection des axes c proches de la normale à la surface de l'échantillon.

Un autre exemple d'ex-grain β est montré sur la Figure IV-22 mais cette fois, l'observation se fait à travers les cartographies IPF. Cette représentation a pour avantage de localiser chacun des variants. À gauche, sont présentées les cartographies de l'état initial et à droite de l'état trempé. Nous avons rassemblé les variants jumeaux sur chacune des cartographies, au sein de l'ex-grain β . Les pourcentages de chaque groupe sont indiqués. De plus, les groupes de variants jumeaux sont rangés par paires désorientées à 90° (V_I - V_{II} , V_{III} - V_{IV} et V_V - V_{VI}). L'orientation de la maille hexagonale est représentée pour chaque groupe de variants jumeaux, en bas à gauche des cartographies. On observe que les variants jumeaux, qui partagent un même plan $\{110\}$ du grain β parent, bien qu'ayant des orientations cristallographiques voisines, ont des morphologies complètement différentes et les lamelles des deux jumeaux s'entrecroisent entre elles.

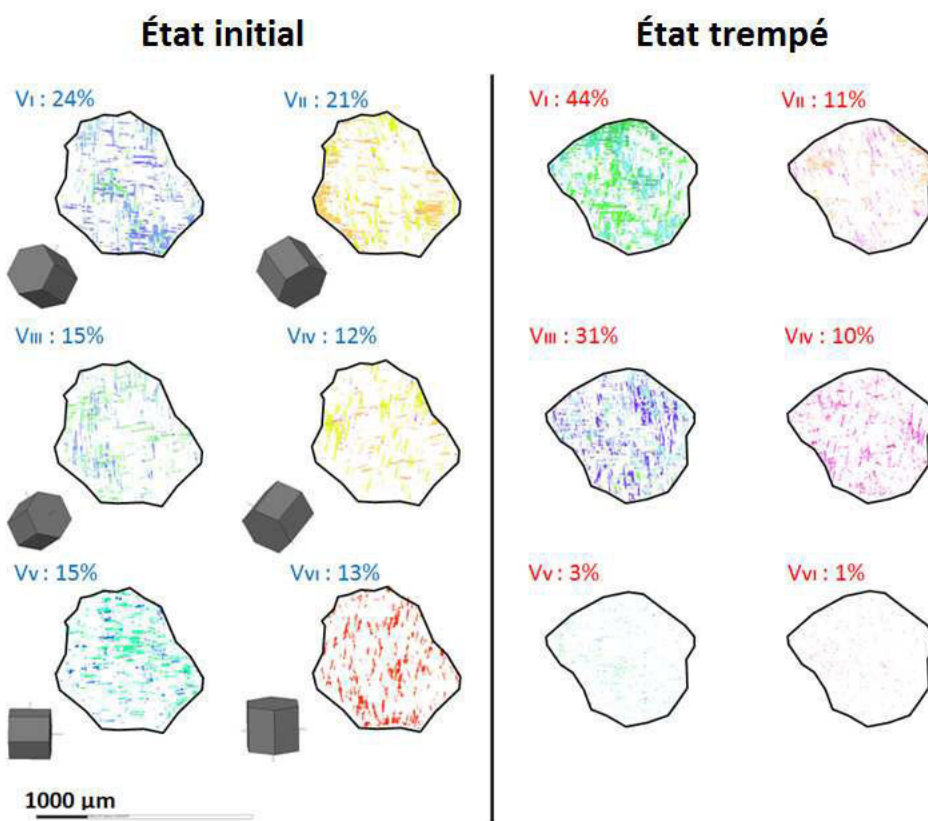


Figure IV-22 : Comparaison des cartes IPF de chacun des axes c avant et après trempe

b. Effet de la trempe et de la vitesse de refroidissement en volume

Des découpes ont été réalisées selon le mode opératoire détaillé dans le §III.3-4 sur les échantillons trempés : une découpe à 2 mm de la surface d'un éprouvette de 1 cm³ et une autre découpe au centre, à la mi-longueur. Une dizaine d'ex-grains β ont été analysés sur la section découpée à 2 mm de la surface et une vingtaine dans la section découpée au centre de l'éprouvette. Les facteurs de Kearns de chacun des ex-grains β ont été déterminés suite à une analyse EBSD et les facteurs de sélection Q et Q_{tv} ont été calculés après une quantification des fractions des variants α . Les surfaces des ex-grains β analysés varient entre 0,2 et 4 mm², l'épaisseur moyenne des lamelles est de 7 μ m. La Figure IV-23 présente l'orientation des colonies α majoritaires au sein de chaque ex-grain β étudié dans la section centrale.

La moyenne des facteurs de Kearns sur l'ensemble des dix ex-grains β présents sur la section découpée à 2 mm de la surface, est $\bar{K}_n = 0,41 \pm 0,05$ et les facteurs de sélection, $\bar{Q} = 0,27 \pm 0,07$; $\bar{Q}_{tv} = 0,24 \pm 0,06$. Pour la section centrale, la moyenne des facteurs de Kearns $\bar{K}_n = 0,28 \pm 0,07$ et celles des facteurs de sélection sont $\bar{Q} = 0,20 \pm 0,1$ et $\bar{Q}_{tv} = 0,18 \pm 0,06$.

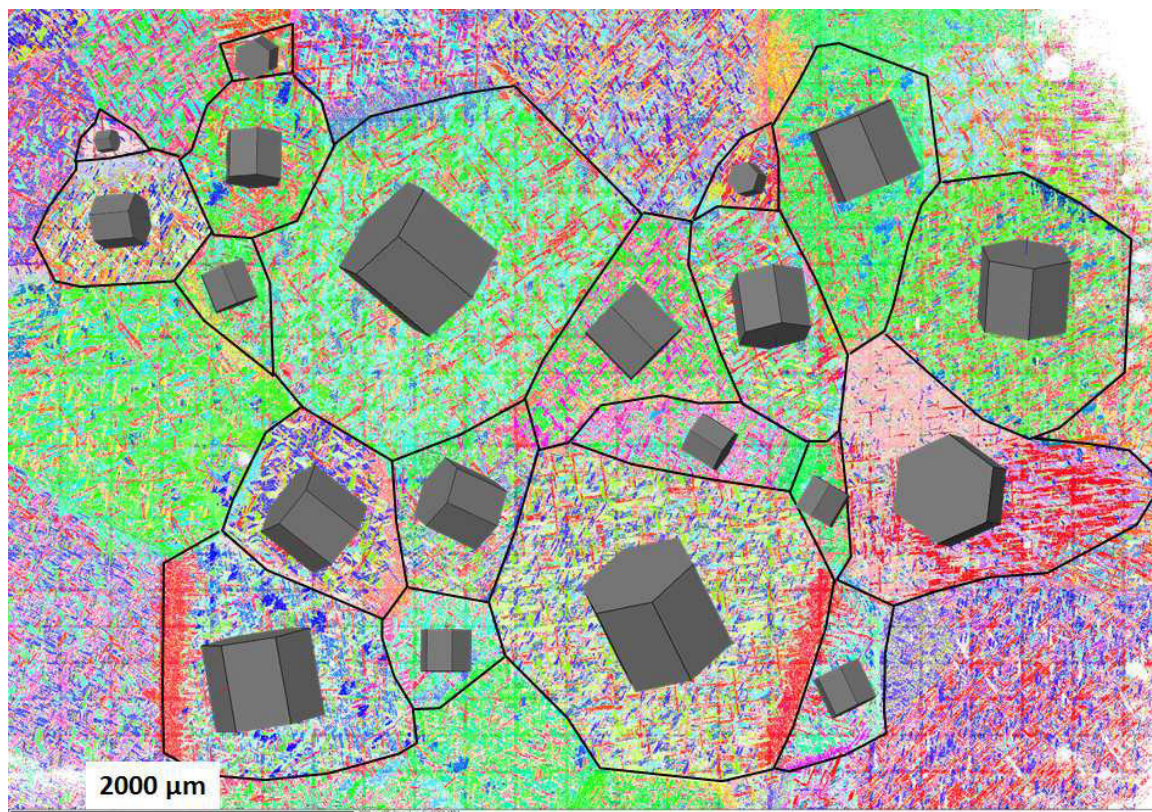


Figure IV-23 : Orientations des mailles hexagonales majoritaires au sein des ex-grains β présentées sur une carte IPF d'une section centrale

En conclusion, au voisinage immédiat de la surface, les axes c ont tendance à se rapprocher (en moyenne) de la normale à cette surface, et au centre aussi bien qu'à 2 mm de la surface de l'éprouvette, les plans prismatiques de première et deuxième espèces sont favorisés, c'est-à-dire que ces plans prismatiques tendent à se coucher pour être parallèles à la surface d'observation. Les facteurs de sélection indiquent qu'il y a plus de sélection près de la surface qu'au cœur.

Pour évaluer l'influence de la vitesse de trempe sur la sélection des variants, deux barrettes prélevées dans la billette brute de forge ont été chauffées dans le domaine β puis ont été trempées, l'une à l'air et l'autre à l'eau, les deux vitesses de refroidissement sont respectivement voisines de 1 et 27 $^{\circ}\text{C.s}^{-1}$. Elles ont ensuite été découpées en sections $2 \times 1 \text{ cm}^2$. Là encore, une analyse EBSD a été effectuée sur ces deux échantillons pour une étude locale au sein de chaque ex-grain β . Les surfaces des ex-grains β observés varient entre 50 000 et 400 000 μm^2 pour les deux échantillons. Les facteurs de Kearns sont en moyenne de 1/3 dans les trois directions du repère échantillon. Les facteurs de sélection varient entre 0,1 et 0,5 autant dans l'un que dans l'autre des échantillons (Figure IV-24). On n'observe pas de sélection des variants significatives, que la vitesse de refroidissement soit faible (1 $^{\circ}\text{C.s}^{-1}$) ou élevée (27 $^{\circ}\text{C.s}^{-1}$).

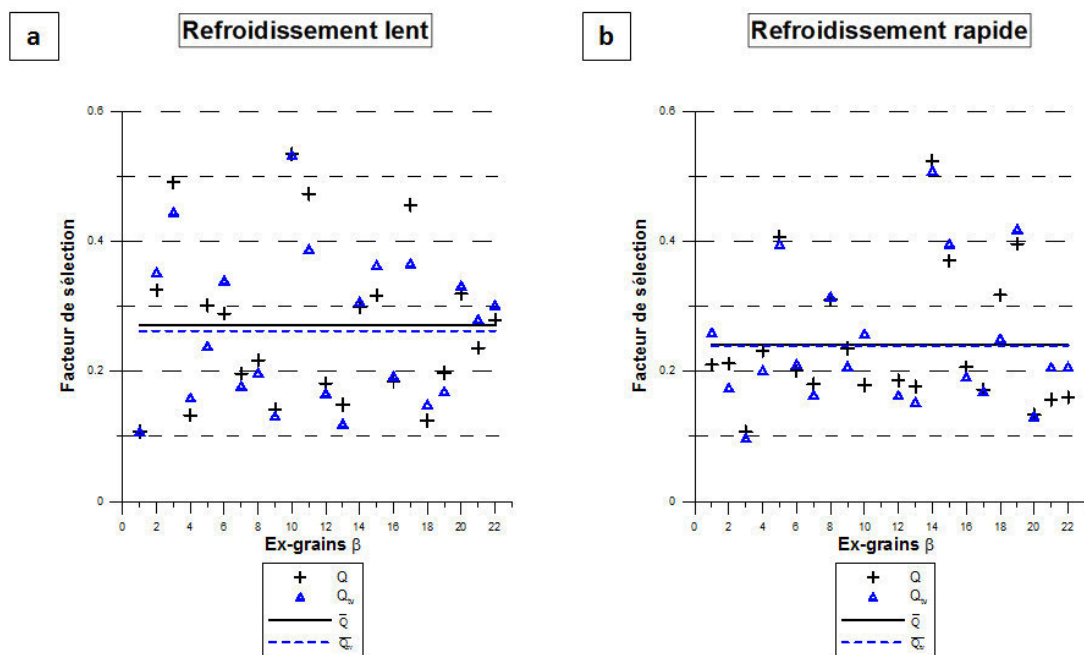


Figure IV-24 : Facteurs de sélection d'un échantillon trempé a) à l'air ; b) à l'eau

Il apparaît néanmoins que les facteurs de sélection sont légèrement moins dispersés dans le cas de l'échantillon trempé à l'eau. Par ailleurs, les facteurs Q et Q_{tv} , sont quasiment équivalents dans beaucoup des cas.

Plusieurs échantillons ont servi à étudier l'effet de la double trempe mentionnée dans §IV.2-1-d. Ils sont classés en deux catégories suivant que (a) la trempe lente précède ou (b) succède à la trempe rapide. Une douzaine d'ex-grains β ont été analysés, leurs surfaces varient entre 0,2 et 2 mm² (soit quatre fois supérieures à celles analysées pour les simples trempes). Les facteurs de Kearns moyens dans les trois directions du repère de l'échantillon sont : $K_R=0,36 \pm 0,04$; $K_\theta=0,35 \pm 0,07$; $K_Z=0,29 \pm 0,06$ dans le cas du refroidissement lent puis rapide, et $K_R=0,38 \pm 0,05$; $K_\theta=0,35 \pm 0,08$; $K_Z=0,28 \pm 0,08$ dans le cas du refroidissement rapide puis lent. Il n'y a donc pas de différence concernant les facteurs de Kearns dans les deux catégories d'échantillons, et les K_R et K_θ sont légèrement plus élevés que les K_Z . Les facteurs de sélection ont aussi été calculés et sont présentés sur la Figure IV-25 avec en abscisse les numéros arbitraires des ex-grains β et en ordonnée les facteurs Q (en noir) et Q_{tv} (en bleu). Les traits pleins indiquent les moyennes de ces facteurs qui sont respectivement, dans le cas (a) : $Q=0,24$ et $Q_{tv}=0,27$.

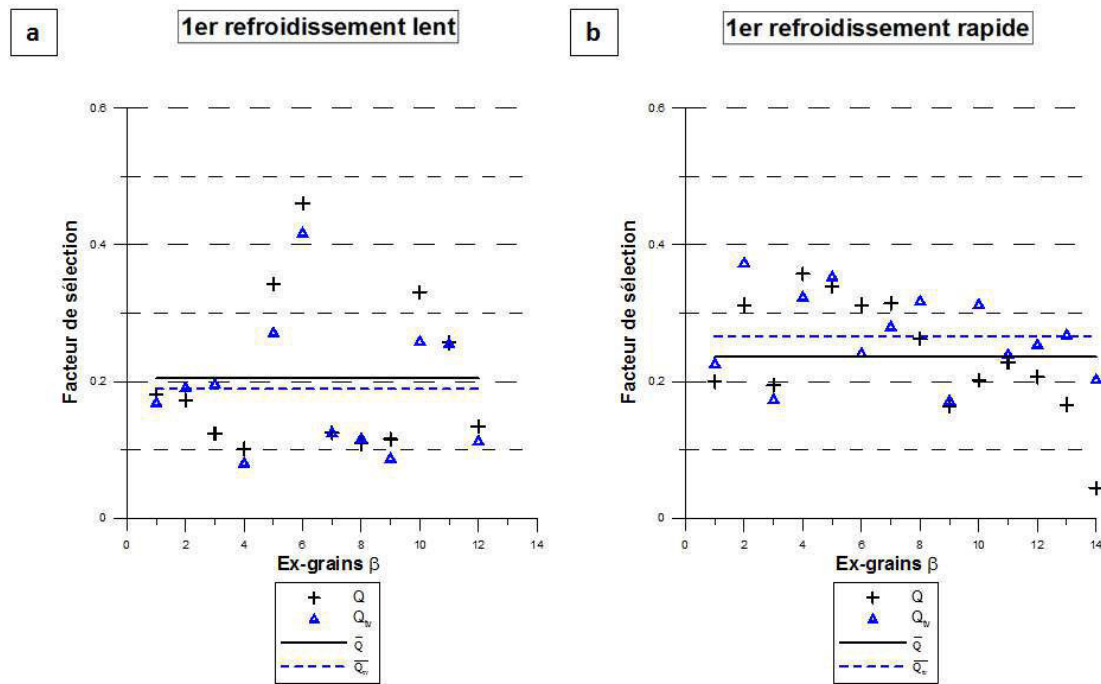


Figure IV-25 : Facteurs de sélection pour les doubles trempes dont la première trempe est a) lente ; b) rapide

Les valeurs moyennes des facteurs de sélection relatives aux deux trempes simples et aux deux trempes doubles sont rassemblées dans le Tableau IV-3.

Tableau IV-3 : Moyennes des facteurs de sélection pour les trempes simples et doubles

Type de trempe	Q	Q_{tv}
Simple trempe lente	0,27	0,26
Simple trempe rapide	0,24	0,24
Double trempe lente + rapide	0,20	0,19
Double trempe rapide + lente	0,24	0,27

Les facteurs de sélection moyens varient entre 0,2 et 0,27. Encore une fois, les facteurs Q et Q_{tv} sont quasiment équivalents. Nous remarquons que les facteurs de sélection pour la simple trempe rapide et pour la double trempe « lente-rapide » sont légèrement inférieurs ou égales aux deux autres, ce qui signifie que la vitesse de la dernière trempe a une influence sur le facteur de sélection. Cette observation se rapproche de celle faite sur les caractères vannerie-platelets parallèles dans le cas des doubles trempes où, là aussi, seule la vitesse de la dernière trempe a une influence sur le caractère morphologique.

c. Effet d'une contrainte au cours du refroidissement

Les expériences dédiées à l'étude de l'influence d'une sollicitation mécanique sur la sélection des variants α lors de la trempe ont déjà été décrites dans §III.1-3-b. Leur influence sur le caractère morphologique a été mentionnée dans §II.2.2.c. Nous rappelons donc que trois éprouvettes ont été sollicitées en traction avec une contrainte de 3,9 MPa et trois autres en compression avec une contrainte de 2,5 MPa. Ces contraintes étaient faibles afin que la déformation pendant leur application demeurât autant que possible dans le domaine élastique.

Les six éprouvettes ont ensuite été découpées dans la section centrale et une analyse EBSD a été effectuée sur chaque section. Une cinquantaine d'ex-grains β ont été étudiés dans l'ensemble des trois éprouvettes pour chaque type de sollicitation. La surface de ces ex-grains β a varié entre 0,2 et 5 mm² pour les éprouvettes de traction et entre 0,1 et 4 mm² pour celles sollicitées en compression. Les moyennes des facteurs de Kearns relatifs aux trois directions du repère de l'échantillon sont de 1/3 pour les éprouvettes de traction avec un écart type de 0,05. Celles des éprouvettes de compression sont $K_R=0,37 \pm 0,05$; $K_\theta=0,37 \pm 0,05$; $K_Z=0,26 \pm 0,05$. Les facteurs de sélection moyens correspondants aux mêmes états sont répertoriés dans le Tableau IV-4.

Tableau IV-4 : Moyennes des facteurs de sélection des éprouvettes trempées sous contrainte

Mode de sollicitation	Q	Q _{tv}
En traction	0,14 \pm 0,07	0,14 \pm 0,06
En compression	0,17 \pm 0,05	0,15 \pm 0,05

Ces résultats indiquent un faible niveau de sélection des variants, qui peut résulter de la faible amplitude des contraintes appliquées.

IV.3. Comparaison des résultats expérimentaux et théoriques relatifs à la sélection de variants

Dans la suite, nous avons comparé, dans la mesure du possible, les résultats de la modélisation de la sélection de variants avec ceux des expériences. Dans la section suivante, le modèle utilisé pour la confrontation est celui qui prend en compte l'accommodation d'Eshelby et l'anisotropie de la maille hexagonale étant donné qu'il inclut le plus de paramètres physiques représentatifs de la réalité.

IV.3.1. Influence d'une contrainte plane durant la trempe

L'étude de l'effet de trempe en surface a été effectuée par le suivi d'un ex-grain β avant et après une trempe au moyen d'analyses EBSD. Pour chacun des grains β analysés, nous avons extrait l'orientation de l'ex-grain, les angles de désorientation entre les axes c des grains α et la normale, les fractions de chaque variants, ainsi que le facteur de Kearns de la normale à la surface de l'éprouvette. Tous ces paramètres nous ont permis de confronter les résultats expérimentaux au modèle de sélection de variants proposé dans le chapitre II.

Dans un premier temps, l'orientation de l'ex-grain β est intégrée dans le programme afin de calculer les facteurs de Kearns pour des contraintes planes telles que :

$$-0,055 \leq \sigma_{//}/\mu \leq 0,057 \quad (\text{IV-3})$$

Ces valeurs limites ont été définies précédemment dans §II.2.3.b.

Les valeurs du facteur de Kearns obtenues grâce au modèle sont alors confrontées à celles obtenues expérimentalement. Sur la Figure IV-26, le facteur de Kearns est porté en fonction de la contrainte.

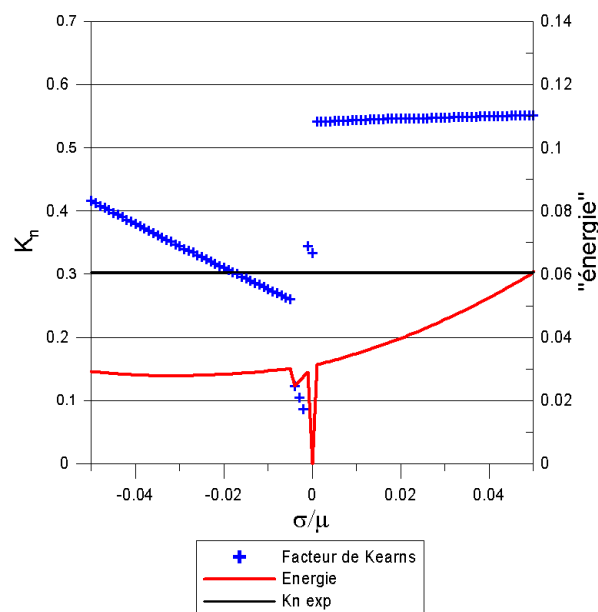


Figure IV-26 : Confrontation des facteurs de Kearns calculés avec celui mesuré. En bleu sont figurés les facteurs de Kearns calculés par le modèle et en noir le facteur de Kearns déterminé expérimentalement pour la contrainte de trempe réelle inconnue. La courbe rouge représente l'énergie minimisée.

Nous avons constaté que les deux courbes représentant les facteurs de Kearns s'intersectaient en un point. La contrainte correspondant à ce point d'intersection a alors été intégrée au code afin de calculer les fractions des variants α .

Parmi les dix ex-grains β étudiés, il existe une solution en contrainte pour seulement trois d'entre eux. La comparaison de la quantification des variants de ces trois grains est représentée sur la Figure IV-27.

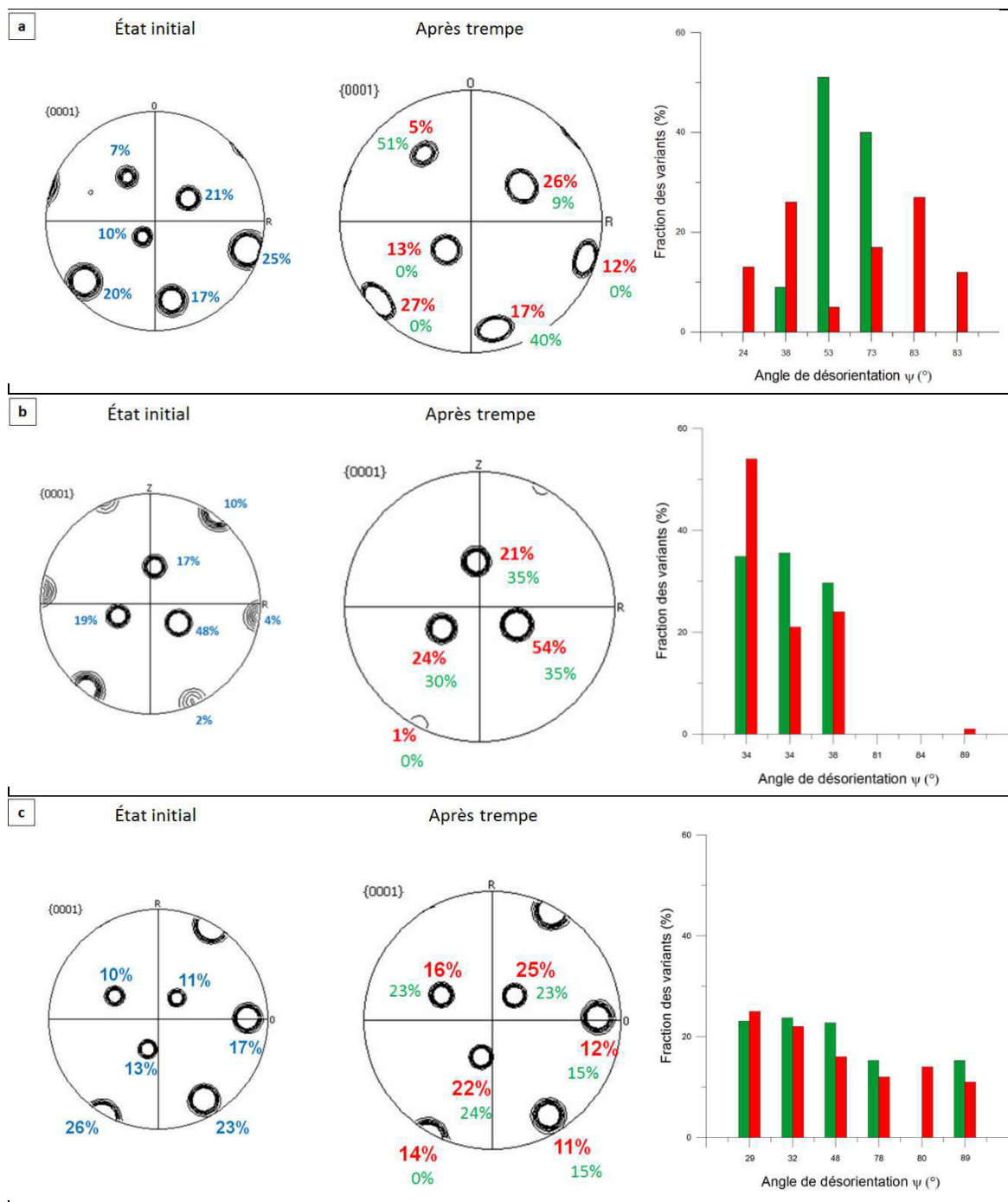


Figure IV-27 : Confrontation des fractions des axes c calculées (en vert) et mesurées (en rouge) dans 2 ex-grains β

Parmi ces trois cas présentés, les grains b et c présentent des résultats issus des calculs analogues aux résultats expérimentaux.

Le Tableau IV-5 récapitule les facteurs de Kearns et de sélection calculés via le modèle et avec les données expérimentales.

Tableau IV-5 : Confrontation des facteurs de Kearns et de sélection calculés et mesurés

	Grain 1		Grain 2		Grain 3	
Direction de la normale à la surface	[324]		[111]		[1 $\bar{1}$ 2]	
	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.
Facteur de Kearns (K_n)	0,303	0,303	0,656	0,665	0,431	0,456
Facteur de sélection Q	0,21	0,71	0,52	0,63	0,14	0,50
Facteur de sélection Q_{tv}	0,39	0,42	0,51	0,48	0,34	0,40
Contrainte (σ/μ)		-0,015		-0,02		-0,015

La comparaison montre que les facteurs de sélection calculés avec les fractions des variants issues du modèle sont plus élevés que ceux calculés avec les fractions mesurées. Les valeurs de σ/μ , caractérisant la contrainte plane, sont voisines de $-0,02$; il s'agit donc d'une contrainte de compression.

IV.3.2. Effet d'une trempe sur un assemblage de quatre ex-grains β

Dans cette sous-section, l'effet d'une contrainte plane associée à la trempe est couplé aux interactions avec les grains du voisinage. Pour cela, nous avons analysé un ensemble connexe d'ex-grains β et nous avons comparé les résultats de l'expérimentation à ceux du modèle. La première comparaison concerne l'effet de la trempe en surface, la deuxième est l'effet d'une trempe sur une section proche de la surface (à 2 mm) et la dernière a porté sur une section découpée à mi-épaisseur de la surface d'une éprouvette de 1 cm³, c'est-à-dire au cœur du volume. La valeur de $\sigma/\mu = -0,02$ estimée en surface a été intégrée dans le modèle avec l'assemblage de 4 ex-grains β décrit dans §3-1 et ce, quel que soit leur profondeur.

a. Effet d'une trempe sur la surface de l'assemblage de quatre ex-grains β

Au sein d'un ex-grain β isolé, nous avons observé une forte sélection des axes c qui tendent à s'aligner avec la direction normale à la surface. Qu'en est-il sur un ensemble d'ex-grains β ?

La Figure IV-28 montre un exemple d'un ensemble de grains β réels en a, et l'illustration du résultat du modèle en b. L'orientation du grain G1 a été attribuée à deux des grains dans l'automate cellulaire à 4 grains afin d'évaluer l'influence du voisinage sur deux grains d'une même orientation. Rappelons que les paramètres d'entrée sont l'orientation des ex-grains β ainsi que la valeur de la contrainte. Les données de sortie sont les fractions des variants α et le facteur de Kearns de la direction normale à la surface.

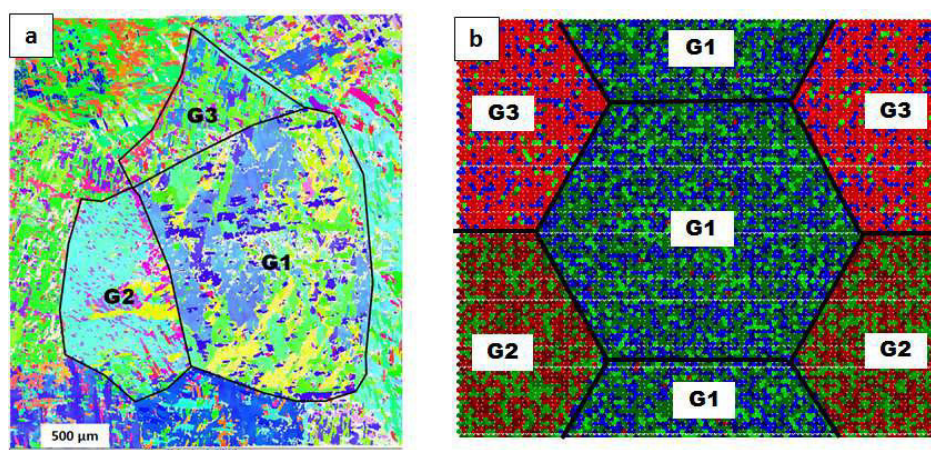


Figure IV-28 : Effet de trempe sur la surface a) ensemble de grains β observé ; b) assemblage de 4 grains β modélisé

La Figure IV-28b montre que les deux grains G1 présentent la même sélection des variants α . Avant de procéder à la comparaison des fractions, il est à noter que l'orientation des ex-grains β a été déterminée grâce à la lecture des angles de désorientation entre les axes c et la direction normale à la surface. Cette mesure est affectée par des incertitudes de telle sorte que l'orientation des grains β dans le modèle n'est pas rigoureusement la même que dans la réalité. Le Tableau IV-6 présente la comparaison entre le modèle et l'expérience. En rouge, sont donnés les angles ψ_{lu} mesurés sur les figures de pôles, et en vert les angles ψ_{mod} issus du modèle.

Tableau IV-6 : Comparaison des angles de désorientation et des fractions des axes c correspondants expérimentaux et issus du modèle. Les angles de désorientation sont regroupés par paire de plans $\{110\}$ désorientés à 90° .

G1				G2				G3			
ψ_{lu}	ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}	ψ_{lu}	ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}	ψ_{lu}	ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}
89	90	0	0	15	14	68	0	26	28	45	1
38	41	21	0	83	84	3	0	63	63	8	5
88	85	1	13	56	54	11	62	44	41	30	0
34	33	54	44	74	74	2	0	52	55	8	74
81	85	0	21	45	46	9	38	80	83	7	16
34	33	24	22	66	68	7	0	74	72	2	4

Il existe peu de décalage entre les orientations expérimentales et celles du modèle. Les fractions des axes c diffèrent entre les mesures et les calculs, mais la tendance générale est tout de même similaire, à savoir que les fractions des axes c proches de la direction normale à la surface sont plus élevées.

Procédons maintenant à la comparaison des fractions des variants. La Figure IV-29 présente les histogrammes des fractions des variants α issues de l'expérience et du modèle.

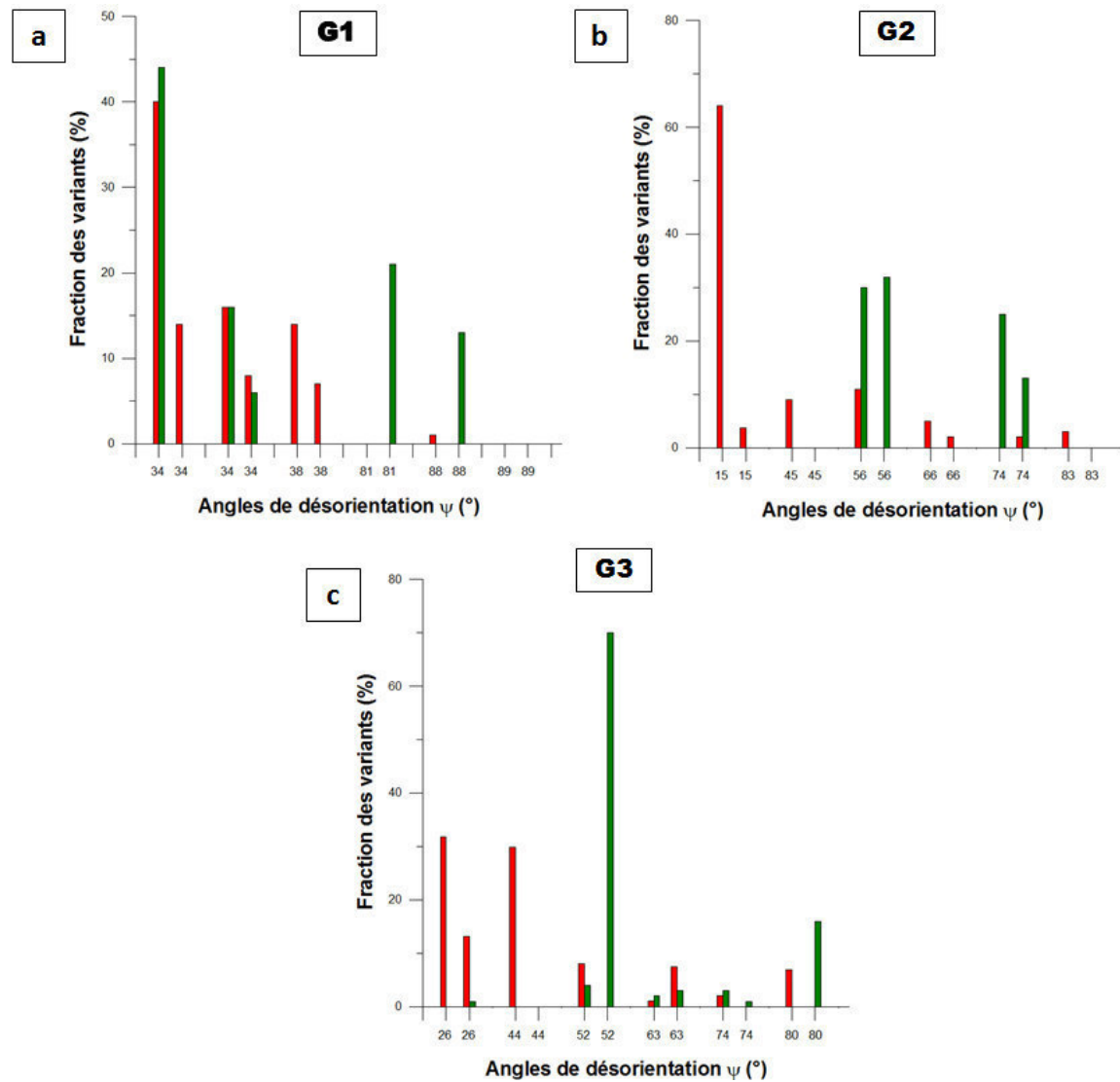


Figure IV-29 : À la surface de l'éprouvette : quantification des fractions des variants par l'expérience et le calcul ; les fractions sont classées par ordre croissant des angles de désorientation des axes c avec la direction normale à la surface, et elles sont regroupées par paires de variants jumeaux (en vert : modèle, en rouge : expérience)

Les calculs n'ont pas donné les mêmes résultats que les mesures expérimentales. L'orientation des ex-grains β a une importance dans la sélection puisque les variants ne sont pas sélectionnés de la même manière dans les mesures que dans les calculs.

Pour avoir une vue globale, les facteurs de Kearns et de sélection sont répertoriés dans le Tableau IV-7.

Tableau IV-7 : Comparaison des paramètres de caractérisation de la sélection des variants expérimentaux et issus des calculs

	Grain 1		Grain 2		Grain 3	
Direction de la normale à la surface	[111]		[412]		[322]	
	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.
Facteur de Kearns (K_n)	0,656	0,472	0,716	0,401	0,565	0,273
Facteur de sélection Q	0,52	0,41	0,62	0,66	0,42	0,70
Facteur de sélection Q_{tv}	0,41	0,47	0,62	0,45	0,39	0,69
Contrainte (σ/μ)	-0,02					

De nouveau, nous observons que, dans l'expérience, les facteurs de Kearns de la direction normale à la surface sont élevés alors que dans le modèle, ils sont aussi bien plus petit ou plus grand qu'un tiers, et dépendant des orientations des ex-grains β . Les facteurs de sélection Q et Q_{tv} expérimentaux et issus du modèle sont relativement proches dans tous les cas ; cependant ils peuvent diverger selon les orientations des ex-grains β ([322] par exemple).

b. Effet d'une trempe sur une section proche de la surface de l'assemblage de quatre ex-grains β

Après la surface, l'observation a porté sur une section découpée à 2 mm de la surface d'une éprouvette trempée. La Figure IV-30 présente un ensemble de 4 ex-grains β observés, a) sur cette section par EBSD, et b) l'illustration du calcul dans l'automate à 4 ex-grains β correspondante.

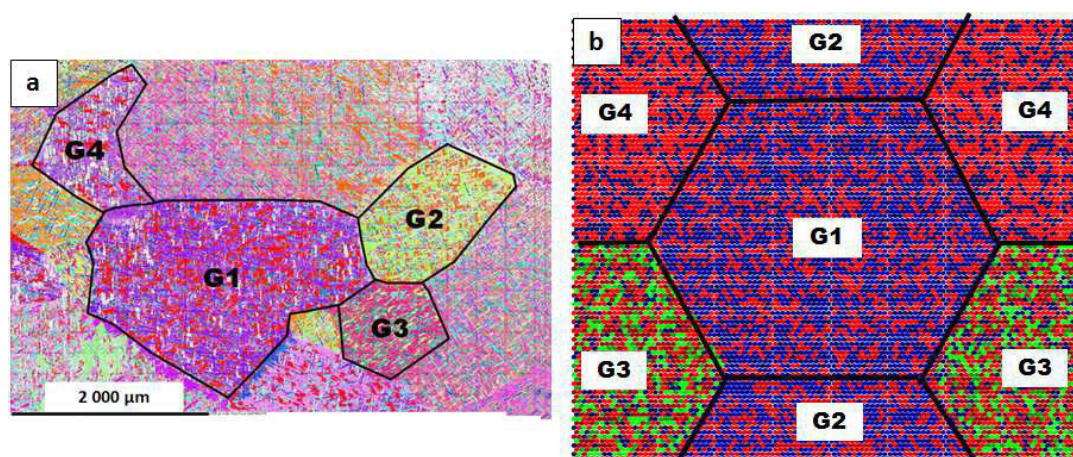


Figure IV-30 : Effet de trempe observé à 2 mm de la surface de l'éprouvette ; a) ensemble de grains β observé ; b) assemblage modélisé de 4 grains β

À première vue, le code de couleur de la cartographie IPF (Figure IV-30a) montre des sélections de variants similaires entre les grains G1, G3 et G4, et toutes les trois différentes de celle du grain G2. Quant aux calculs, les cas des grains G1 et G2 sont similaires, cependant sont différents de G3 et G4.

Le Tableau IV-8 et la Figure IV-31 présentent les résultats de la quantification des axes c et des fractions des variants α .

Tableau IV-8 : Comparaison des angles de désorientation et des fractions des axes c correspondant expérimentaux et issus du modèle. Les angles de désorientation sont regroupés par paire de plans {110} désorientés à 90°.

G1				G2				G3				G4			
Ψ_{lu}	Ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}	Ψ_{lu}	Ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}	Ψ_{lu}	Ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}	Ψ_{lu}	Ψ_{mod}	f_{exp}	f_{mod}
87	84	28	0	30	27	26	0	60	55	38	34	32	27	29	0
59	60	8	66	71	65	10	0	73	70	7	20	82	79	6	0
28	25	28	0	86	83	25	43	68	65	18	20	37	34	27	0
77	72	7	0	68	69	14	57	54	50	11	11	81	76	11	61
37	34	21	0	39	39	18	0	10	10	18	15	88	87	19	39
73	66	8	34	68	58	7	0	86	86	8	0	50	50	8	0

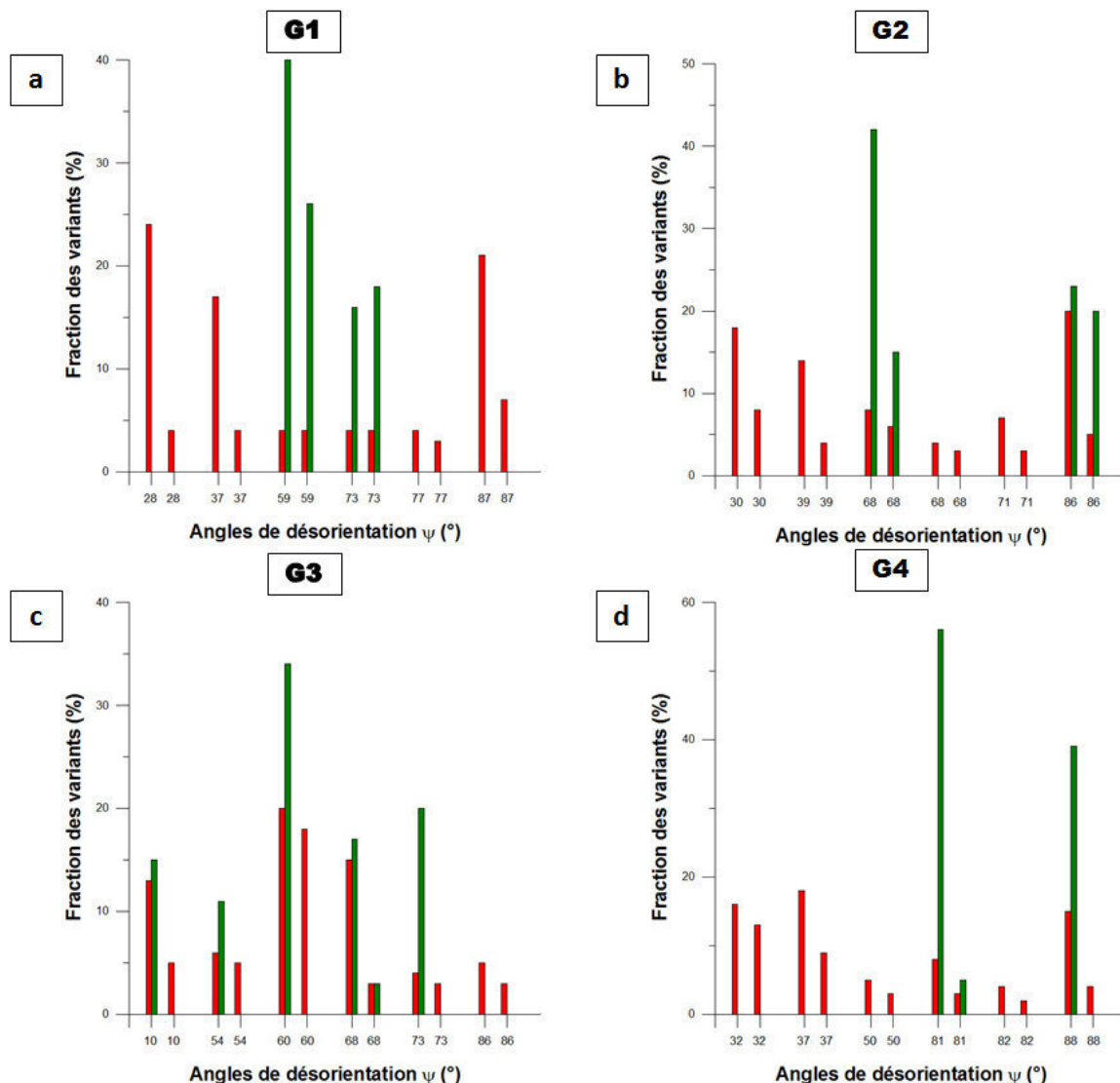


Figure IV-31 : Sur une section découpée à 2 mm de la surface : quantification des fractions des variants par l'expérience et le calcul ; les fractions sont classées par ordre croissant des angles de désorientation des axes c avec la direction normale à la surface, et elles sont regroupées par paires de variants jumeaux

Dans le Tableau IV-9 et sur la Figure IV-31, les résultats du calcul ne correspondent pas à l'expérience avec la contrainte donnée et nous observons une forte sélection des variants α dans le modèle, contrairement aux mesures expérimentales.

Tableau IV-9 : Comparaison des paramètres de caractérisation de la sélection des variants expérimentaux et issus des calculs – effet d'une trempe en surface

	Grain 1		Grain 2		Grain 3		Grain 4	
Direction de la normale à la surface	[112]		[114]		[541]		[112]	
	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.
Facteur de Kearns (K_n)	0,413	0,224	0,386	0,194	0,374	0,359	0,451	0,199
Facteur de sélection Q	0,25	0,68	0,19	0,64	0,28	0,28	0,24	0,66
Facteur de sélection Q_{iv}	0,26	0,47	0,20	0,48	0,22	0,37	0,20	0,65
Contrainte (σ/μ)	-0,02							

Les calculs des facteurs de sélection ont confirmé la remarque faite précédemment (Tableau IV-9) : ils sont le plus souvent deux à trois fois plus élevés que dans le cas réel. De plus, les facteurs de Kearns mesurés expérimentalement sont proches de 0,4 alors que ceux issus du calcul sont plus faibles. Les variants choisis par la minimisation d'énergie telle qu'implémentée ne sont pas les mêmes que ceux observés sur la section à 2 mm de la surface.

c. Effet d'une trempe sur le volume de l'assemblage de quatre ex-grains β

Dans ce dernier paragraphe, nous présentons à nouveau la comparaison de l'effet de trempe couplé avec celui du voisinage, mais dans le volume de l'éprouvette. Une section découpée à mi-épaisseur d'une éprouvette de 1 cm³ a été observée et analysée par EBSD. Les orientations de 4 ex-grains β ont été mesurées et implémentées dans le modèle.

Expérimentalement, nous avons observé que dans le volume de l'éprouvette, l'effet de la trempe sur la sélection des variants est estompé. En revanche, en considérant, à défaut de pouvoir faire mieux, la même contrainte de trempe en volume qu'en surface, le modèle a agi évidemment comme en surface avec une forte sélection des variants α (Figure IV-32).

Par ailleurs, la relaxation induite par la matrice environnante ne peut pas être abordée par une approche d'Eshelby pour une inclusion coupée par la surface extérieure.

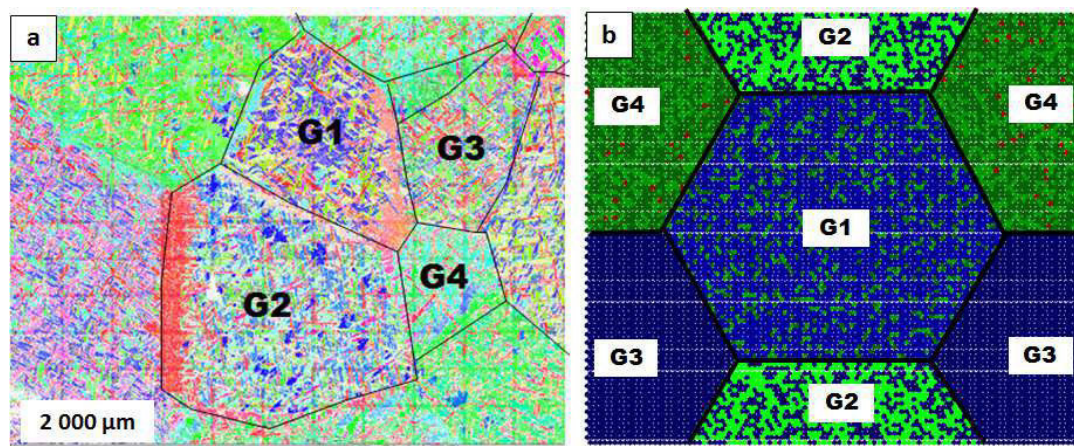


Figure IV-32 : Effet de trempe observé dans le volume de l'éprouvette ; a) ensemble de grains β observé ; b) assemblage de 4 grains β

L'analyse EBSD a montré qu'il y avait peu de sélection, avec des facteurs d'environ 0,2 alors que ceux issus du calcul étaient très élevés (Tableau IV-10). La moindre sélection à cœur peut s'interpréter comme liée à une diminution de la contrainte (à 2 mm de profondeur) ou comme un passage à un autre mode de contraintes (3D).

Tableau IV-10 : Comparaison des paramètres de caractérisation de la sélection des variants expérimentaux et issus des calculs – effet d'une trempe en volume

	Grain 1		Grain 2		Grain 3		Grain 4	
Direction de la normale à la surface	[112]		[421]		[325]		[221]	
	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.
Facteur de Kearns (K_n)	0,249	0,185	0,28	0,832	0,3	0,271	0,193	0,518
Facteur de sélection Q	0,20	0,63	0,13	0,76	0,11	1,00	0,27	0,96
Facteur de sélection Q_{iv}	0,19	0,68	0,14	0,76	0,11	1,00	0,22	0,69
Contrainte (σ/μ)	-0,02							

IV.3.3. Effet d'une contrainte appliquée lors de la transformation sur un ensemble de quatre ex-grains β

Dans l'étude précédente, la valeur de la contrainte σ/μ utilisée dans le modèle était égale à -0,02, ce qui est très élevé. Dans les séries d'expériences dans lesquelles nous avons appliqué une contrainte lors de la trempe, la contrainte appliquée est de l'ordre de 4 MPa en tension et 2,5 MPa en compression. En utilisant les constantes élastiques estimées à 923 °C dans la référence [3], ceci donne la valeur $\sigma/\mu=0,0002$ pour d'une part, la traction, et d'autre part, la valeur $\sigma/\mu=-0,0001$ pour la compression (soit 100 fois plus faibles).

a. Effet d'une contrainte de traction appliquée lors de la trempe

Les éprouvettes ont été découpées et analysées par la méthode EBSD dans un plan passant par le centre et perpendiculaire à la direction de traction. Un ensemble de 4 grains a été repéré et la caractérisation microstructurale a permis d'obtenir les fractions de chaque variant α au sein de chacun des 4 ex-grains β . Le facteur de Kearns de la direction normale à la surface a été déterminé ainsi que les indices de Miller de cette normale. Les facteurs de sélection ont été calculés.

Par la suite, la direction de la normale des 4 ex-grains β a été intégrée dans l'automate représentant l'assemblage de 4 grains, ainsi que la valeur de la contrainte appliquée expérimentalement lors de la transformation.

Les résultats sont présentés dans les figures et tableaux suivants :

La Figure IV-33a montre l'ensemble des 4 ex-grains β observés dans l'éprouvette de traction, et la Figure IV-33b est l'illustration de la modélisation.

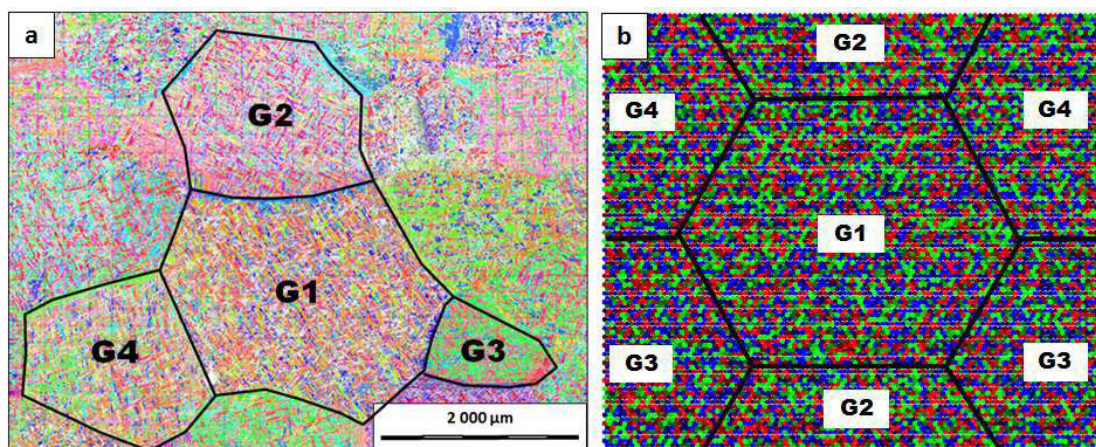


Figure IV-33 : Effet d'une traction appliquée lors de la trempe : a) Cartographie IPF d'un ensemble de 4 ex-grains beta dans la section centrale de l'éprouvette ; b) illustration de l'automate représentant l'assemblage de 4 grains correspondant au cas réel a)

L'illustration de l'automate montre qu'il n'y a pas de différence entre les 4 grains β d'orientation différente. La contrainte imposée est vraisemblablement trop faible pour induire une sélection grande.

Les fractions des variants α sont présentées sur la Figure IV-34. La répartition des variants est plutôt homogène dans l'ensemble des cas.

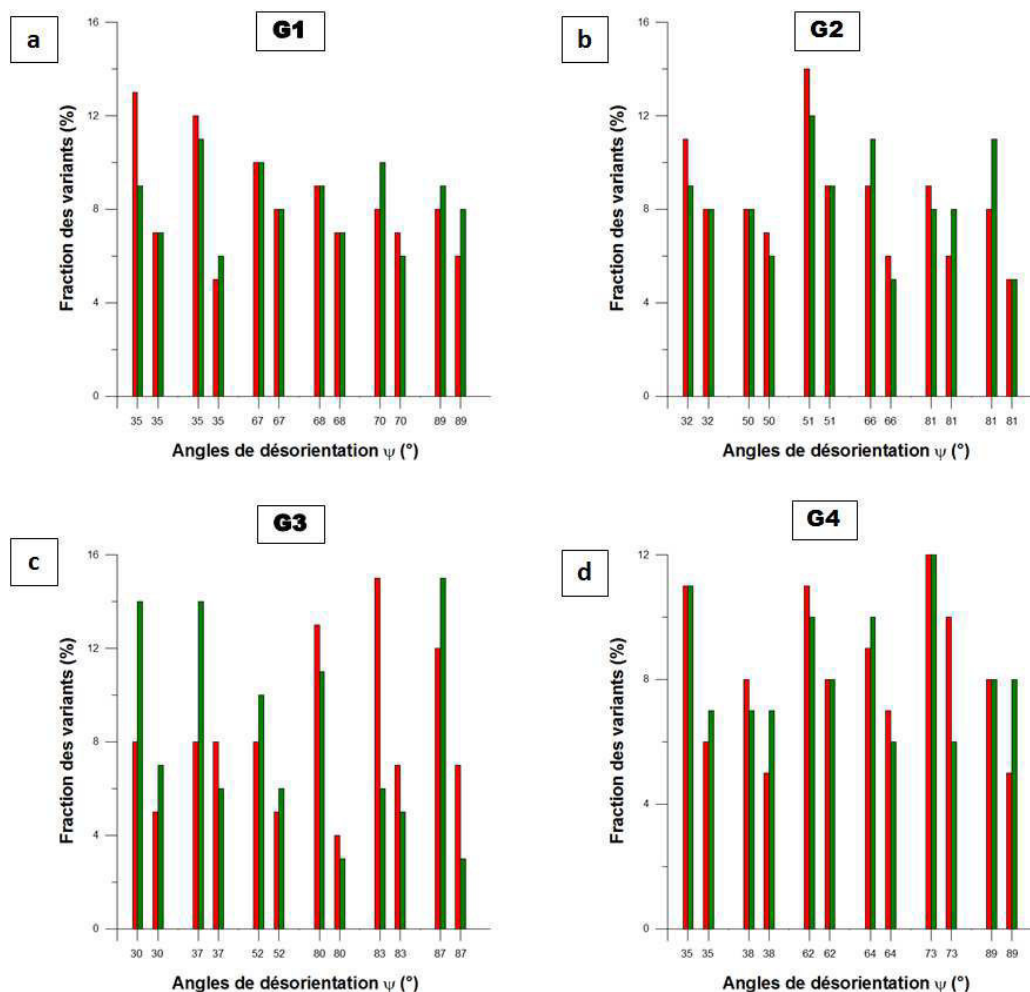


Figure IV-34 : Quantification des variants par la mesure et le calcul sur une éprouvette mise en tension lors de la trempe ; les fractions sont classées par ordre croissant des angles de désorientation des axes c avec la direction normale à la surface, et elles sont regroupées par paires de variants jumeaux

Dans le même sens, le Tableau IV-11 montre l'absence de sélection des variants α , aussi bien dans les résultats expérimentaux que théoriques ; les facteurs de sélection sont proches de 0,1.

Tableau IV-11 : Comparaison des paramètres de caractérisation de la sélection des variants expérimentaux et issus des calculs – effet d'une contrainte de traction

	Grain 1		Grain 2		Grain 3		Grain 4	
Direction de la normale à la surface	[114]		[104]		[3 $\bar{2}$ 2]		[311]	
	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.
Facteur de Kearns (K_n)	0,363	0,332	0,369	0,334	0,288	0,389	0,319	0,331
Facteur de sélection Q	0,06	0,02	0,09	0,06	0,09	0,09	0,09	0,04
Facteur de sélection Q_{iv}	0,08	0,06	0,08	0,08	0,12	0,15	0,08	0,07
Contrainte (σ/μ)	0,0002							

Quant aux facteurs de Kearns, ils sont proches de 0,333 ce qui correspond au cas isotrope.

b. Effet d'une contrainte en compression appliquée lors de la trempe

L'effet d'une contrainte de compression appliquée lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ couplé avec l'influence du voisinage a enfin été examiné.

Nous avons observé la même chose que précédemment, la contrainte étant trop faible pour qu'il y ait une sélection des variants α .

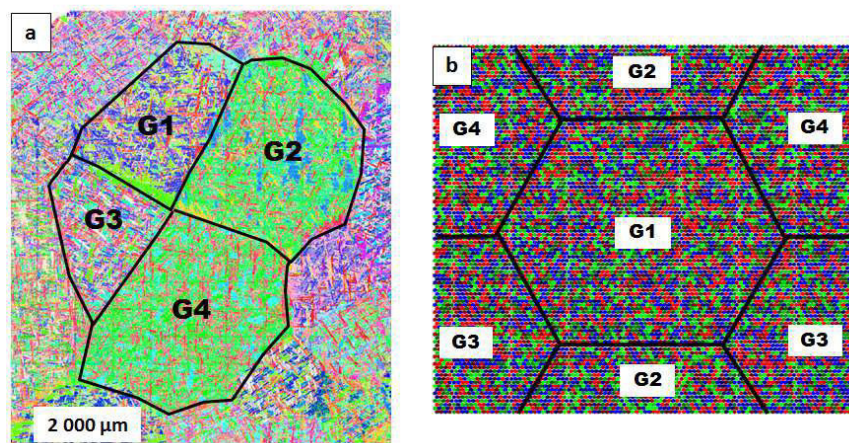


Figure IV-35 :Effet d'une compression appliquée lors de la trempe : a) Cartographie IPF d'un ensemble de 4 ex-grains β dans la section centrale de l'éprouvette ; b) illustration de l'automate représentant l'assemblage de 4 grains correspondant au cas réel a)

Tableau IV-12 : Comparaison des paramètres de caractérisation de la sélection des variants expérimentaux et issus des calculs – effet d'une contrainte de compression

	Grain 1		Grain 2		Grain 3		Grain 4	
Direction de la normale à la surface	[214]		[111]		[127]		[111]	
	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.	exp.	mod.
Facteur de Kearns (K_n)	0,243	0,337	0,187	0,377	0,268	0,342	0,228	0,357
Facteur de sélection Q	0,18	0,05	0,26	0,07	0,17	0,06	0,15	0,05
Facteur de sélection Q_{tv}	0,16	0,09	0,22	0,11	0,13	0,11	0,17	0,11
Contrainte (σ/μ)	-0,0001							

Les facteurs de sélection du Tableau IV-12 sont faibles (autour de 0,1 dans le modèle ; et 0,2 à partir des données expérimentales). Les facteurs de Kearns expérimentaux sont légèrement inférieurs à celui du cas isotrope alors que ceux du modèle restent proches du cas isotrope.

IV.4. Conclusion

Dans ce chapitre, les résultats des différents essais expérimentaux et issus de la modélisation décrits dans les chapitre II et III ont été présentés.

Après une caractérisation microstructurale de l'état initial du matériau étudié, une loi de croissance des grains β a été établie ; l'effet de la double trempe observé en contexte

industriel, a été reproduit au laboratoire. Une explication de la croissance exagérée des grains β a été proposée puis démontrée au moyen d'essais de chauffage rapide à l'aide d'un four à induction.

La microstructure de trempe a été analysée avec soin via diverses méthodes d'observation. Une méthode de quantification des caractères morphologiques, vannerie/platelets parallèles, a été mise en place ainsi qu'une méthode à l'échelle cristallographique pour quantifier les variants α .

Enfin, quelques études sur la sélection des variants ont été menées pour mettre en évidence l'effet d'une trempe, puis l'effet d'une contrainte appliquée lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$. Les résultats de ces études ont été confrontés avec les calculs du modèle de minimisation d'énergie élastique du système.

En somme, une trempe en surface entraîne une forte sélection des axes c proches de la normale. Ce résultat expérimental est entériné, pour une partie des cas étudiés, par le calcul du modèle de minimisation de l'énergie élastique du système, cependant la sélection est bien plus forte dans le calcul que dans l'observation. A ce stade, le modèle ne permet pas encore ni de prédire la sélection des variants ni d'adhérer complètement aux résultats expérimentaux. Il faut pousser l'étude un peu plus loin, d'implémenter plus de paramètres dans ce modèle pour pouvoir espérer d'avoir davantage d'adéquation avec les cas observés. Toutefois, il nous a permis d'identifier la nature de la contrainte de trempe ainsi que son ordre de grandeur.

Références :

- [1] J. E. Burke and D. Turnbull, “Recrystallization and grain growth,” *Prog. Met. Phys.*, vol. 3, pp. 220–292, Jan. 1952.
- [2] O. T. Woo and K. Tangri, “Transformation characteristics of rapidly heated and quenched zircaloy-4-oxygen alloys,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 79, no. 1, pp. 83–94, Jan. 1979.
- [3] N. Gey, M. Humbert, E. Gautier, and J. L. Béchade, “Study of the $\beta \rightarrow \alpha$ variant selection for a zircaloy-4 rod heated to the β transus in presence or not of an axial tensile stress,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 328, no. 2–3, pp. 137–145, Jul. 2004.

Discussion générale, conclusion et perspectives

Lors du procédé de fabrication des gaines de combustibles, pendant le recuit β suivi de la trempe, il peut apparaître des amas grossiers de platelets parallèles dont certains, suivant leur orientation, sont délicats à fragmenter pendant le filage, même si des traitements appropriés permettent de résoudre la difficulté et d'obtenir *in fine* des produits conformes.

La motivation industrielle réside dans un premier temps dans l'évaluation quantitative de l'aptitude de la microstructure de trempe à se transformer ultérieurement en microstructure équiaxe et isotrope. Dans un second temps, l'industriel s'intéresse à l'optimisation de la trempe pour encore réduire la formation de platelets parallèles donc favoriser la germination de α à l'intérieur des grains β et réduire la sélection de variants, c'est-à-dire rendre équiprobables les variants, en diminuant l'intensité des contraintes de trempe.

La présente étude a été dédiée plus spécifiquement à la caractérisation des microstructures de trempe de l'alliage Zircaloy-4. Après une synthèse bibliographique, nous nous sommes intéressés plus particulièrement à la quantification des caractères autant morphologiques que cristallographiques de l'alliage trempé.

Les alliages de zirconium présentent deux formes cristallographiques : à haute température, la phase β (cubique centrée) est stable, et à basse température, nous trouvons en quasi-totalité la phase α (hexagonale compacte). Le domaine de température de coexistence à l'équilibre thermodynamique des phases α et β se trouve de ~ 800 à 950 °C (en refroidissement continu). Au cours de la transformation $\alpha \rightarrow \beta$, un grain α peut engendrer 6 orientations β différentes alors qu'au refroidissement, un grain β peut donner naissance à 12 orientations distinctes. Lors de la transformation de phases, divers paramètres peuvent influencer la sélection des orientations, aussi bien au chauffage qu'au refroidissement.

Le matériau de départ est en quasi-totalité en phase α , et présente une structure lamellaire arrangée, soit en vannerie, soit en platelets parallèles.

Nous avons mis en place une méthodologie pour déterminer la longueur des joints entre colonies de lamelles α afin de calculer un indice χ qui caractérise la *morphologie* vannerie/platelets parallèles du matériau. Plus précisément, plus l'indice χ est grand plus le matériau présente une microstructure en vannerie, et dans le cas contraire, en platelets parallèles. Les différentes caractérisations de la microstructure qui ont été explicitées dans la thèse sont résumées dans le Tableau 1.

Nous avons aussi établi une méthode à partir des analyses EBSD dans le but, cette fois, de quantifier les *orientations* des variants α au sein d'un ex-grain β . Pour ceci, le facteur de Kearns

de la direction normale à la surface d'observation sert à évaluer le phénomène de sélection de variants quand celui-ci a eu lieu. Nous avons aussi introduit un facteur de sélection pour compléter cette évaluation. À partir des fractions des 12 variants ou des axes c , ces facteurs représentent l'écart entre le cas étudié et le cas isotrope, sans sélection de variants.

Tout d'abord, rappelons que le terme de « trempe » utilisé dans cette thèse n'a pas de connotation de refroidissement très rapide. Il est employé au sens large car la billette du Zircaloy-4 est refroidie à l'air ou trempée à l'eau ; la vitesse de refroidissement est donc très faible à cœur par rapport à une vraie trempe où elle serait de l'ordre de centaines voir de milliers de degrés par seconde. Les vitesses de refroidissement imposées en laboratoire n'excèdent pas la trentaine de degrés par seconde. Quant aux refroidissements plus rapides mentionnés dans les chapitres précédents, il s'agit d'estimations par un modèle disponible chez l'industriel et qui n'a pas été décrit dans la thèse. Les micrographies correspondantes sont strictement dédiées à la caractérisation morphologique.

* Simple trempe

L'effet de la trempe a été étudié à plusieurs profondeurs dans l'éprouvette : en surface, à proximité de la surface et enfin au cœur.

Nous avons observé qu'en surface de l'éprouvette, la trempe a un effet très significatif sur la sélection de variants. En effet, le facteur de Kearns de la direction normale à la surface augmente fortement après la trempe, ainsi que les facteurs de sélection. En comparaison avec le modèle de sélection des variants par minimisation de l'énergie élastique du système, la sélection des variants observée est plus forte que la prédiction théorique. Pour les cas réels étudiés, le modèle ne présente pas toujours une solution de contrainte de trempe compatible, ce qui peut être expliqué par l'absence d'une loi de probabilité dans le modèle. En effet, la sélection des variants dans le modèle est telle que le variant choisi est celui qui minimise l'énergie globale, or plusieurs variants peuvent répondre à ce critère. Le choix numérique se porte systématiquement sur les mêmes variants étant donné que l'option du logiciel est définie en réalité par l'état de la première cellule choisie. Pour pallier ce problème numérique, une loi de probabilité relative au niveau de minimisation d'énergie du système pourra être introduite, ce qui serait plus proche de la réalité. Hormis cet artefact numérique, les résultats du modèle en présence d'une contrainte plane vont dans le même sens que les observations expérimentales, c'est-à-dire qu'il y a une forte sélection de variants. De plus, les résultats du modèle s'interprètent avec une contrainte plane liée à la trempe, en surface, est de nature compressive et bien plus élevée (d'un facteur 100) que les contraintes que nous avons appliquées dans les expériences décrites.

Quant à la caractérisation morphologique, le caractère vannerie diminue par rapport à l'état initial.

Cette sélection des variants s'estompe au fur à mesure que l'observation s'effectue de plus en plus loin de la surface des éprouvettes. Le facteur de Kearns de la direction normale à la surface d'observation diminue jusqu'à atteindre la valeur $1/3$, valeur relative au cas isotrope. De même, les facteurs de sélection s'atténuent au fur à mesure que l'on s'approche du cœur de l'éprouvette. En parallèle, le caractère vannerie diminue, ce qui signifie qu'il décroît avec la baisse de la vitesse de trempe. Une étude plus poussée de la morphologie montre que la corrélation entre la vitesse de trempe et les caractères vannerie/platelets parallèles n'est pas si évidente. Nous avons étudié des micrographies de différentes microstructures, prises à différentes profondeurs dans une plaque de Zircaloy-4. Nous avons alors observé que le caractère vannerie diminue légèrement avec l'augmentation de la vitesse de trempe, alors que, sur les échantillons étudiés en laboratoire, le phénomène inverse est observé (sauf à la surface). Deux remarques peuvent être faites à ce niveau de l'étude :

- premièrement, les deux échantillons de matériau ne sont pas similaires donc pas comparables. Les échantillons trempés à grande vitesse sont issues d'une plaque, prélevée bien en aval du procédé de fabrication, alors que le matériau étudié en laboratoire provient d'une billette forgée puis trempée, prélevée tout au début de procédé de fabrication. Les deux types d'échantillons n'ont pas la même histoire thermomécanique ;
- deuxièmement, la méthode de détection des joints entre les colonies de lamelles a ses limites. Quand les lamelles sont trop fines, ce qui est dû à une sévère trempe, la détection doit s'effectuer sur des micrographies réalisées à grande résolution, mais dans ce cas, le caractère statistique est limité. Toutefois, l'écart-type permet de compléter cette caractérisation en renseignant sur l'homogénéité de l'échantillon.

* Double trempe

En relation avec la vitesse de trempe, l'effet d'une double trempe a été étudié. Selon le type de refroidissement (à l'air ou à l'eau – « lent » ou « rapide ») de la première trempe, la loi de croissance des grains β au cours du réchauffage diffère. La croissance des grains β est anormalement élevée quand le premier refroidissement est lent, la vitesse du deuxième refroidissement n'influe évidemment pas ce phénomène qui lui est antérieur. Par ailleurs, les expériences ont aussi montré qu'un chauffage lent favorisait la croissance des grains β alors qu'un chauffage rapide favorisait la germination de ceux-ci. En effet, les lamelles issues d'un refroidissement lent sont relativement épaisses en comparaison de celles issues d'un refroidissement rapide, par conséquent les sites de germination des grains β au chauffage sont moins nombreux dans le premier cas. Lors d'un chauffage lent, la croissance est favorisée, étant donné qu'il y a moins de sites actifs de germination dans le cas du refroidissement lent car les grains β sont bien plus gros que dans le cas du refroidissement rapide. Nous avons démontré que suite à un premier refroidissement lent, un chauffage rapide limite cette croissance en favorisant la germination au début de la transformation de

phase. En augmentant la vitesse de chauffage d'un facteur 6, la vitesse de croissance des grains β est effectivement diminuée d'un facteur 2. Outre la vitesse de chauffage, nous avons caractérisé les microstructures après chaque trempe. Aucun lien visible n'a été observé, le caractère morphologique est défini par la dernière trempe. Après une trempe lente, le caractère vannerie est plus prononcé qu'après une trempe rapide, ce qui est inattendu. Quant à l'étude cristallographique, les facteurs de sélection sont du même ordre de grandeur que dans l'état initial avec une légère baisse dans le cas des trempes rapides, ce qui va dans le même sens que nos observations précédentes. Le facteur de Kearns est proche de la valeur $1/3$, correspondant au cas isotrope.

Pour résumer, nous observons une sélection de variants notable en surface des éprouvettes ou au voisinage de celle-ci, c'est-à-dire sous l'effet de la forte contrainte plane introduite par la trempe. La vitesse de refroidissement a un impact sur les épaisseurs des lamelles cependant son influence sur le caractère vannerie/platelets parallèles n'est pas très claire. De manière générale, plus la vitesse est élevée plus les lamelles sont en vannerie mais l'effet inverse a été aussi observé dans notre cas.

* Contrainte imposée

L'étape suivante de l'étude a consisté à appliquer une contrainte de traction d'une part, et de compression d'autre part, pendant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$. L'état de contrainte uniaxiale de l'éprouvette de traction ou de compression est équivalent en terme déviatorique à celui de l'éprouvette trempée en contrainte plane. Les contraintes appliquées sont relativement faibles pour deux raisons : la première, d'ordre technique, est liée à la géométrie des éprouvettes et à l'installation expérimentale : les valeurs des contraintes choisies doivent être faibles pour éviter le phénomène de fluage ; la deuxième raison est liée à notre objectif de départ qui est d'appliquer une contrainte suffisamment faible pour rester dans le domaine élastique. Il est évident qu'une déformation plastique influe sur les orientations des grains α et sur leur texture. Ceci a déjà été étudié par certains auteurs qui ont défini les textures correspondant aux différents types de déformation. Notre hypothèse de départ est qu'au sein du matériau, lors de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ les variants qui germent sont ceux qui minimisent l'énergie élastique du système. Pour observer ce phénomène expérimentalement, nous avons appliqué une contrainte de l'ordre de quelques mégapascals afin d'observer son effet sur la sélection de variants. Au moyen de ces expériences, nous avons observé que les facteurs de sélection ont diminué ce qui est inattendu et que le facteur de Kearns est resté inchangé par rapport à l'état initial, ce qui signifie que le matériau devient plus isotrope.

Gey *et al.* [1] ont observé une texture, intensifiée après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$, mais qui est relaxée sous l'action d'une contrainte en tension lors du chauffage.

Romero *et al.* [2] n'ont pas abouti aux mêmes conclusions car ils ont observé qu'après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$, la texture est relaxée. Wenk *et al.* [3] et Daymond *et al.* [4] ont observé après un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ une texture issue de la déformation. Enfin, Mosbrucker *et al.* [5] ont

complété les travaux de Daymond *et al.*, en appliquant une contrainte (en traction puis en compression) au chauffage, au refroidissement ou pendant tout le cycle. Les résultats ne diffèrent de ceux de Daymond *et al.* que quand une contrainte de tension est appliquée lors du chauffage. Dans notre cas, les contraintes sont aussi faibles, mais nous ne pouvons pas affirmer si l'isotropie observée est due à la contrainte ou tout simplement au traitement thermique (montée dans le domaine β puis trempe). Il est important de noter que notre matériau, contrairement aux autres matériaux étudiés par les auteurs cités auparavant, se situe à une étape amont du procédé de fabrication et il présente de ce fait une microstructure différente. Outre cette différence dans l'histoire thermomécanique, la taille des ex-grains β de notre matériau est bien plus grande (d'un facteur 10 environ). Enfin, excepté pour les deux derniers auteurs, les vitesses de montée en température et de refroidissement sont relativement similaires. Les résultats concernant l'étude de la sélection des variants par les différents acteurs sont rappelés dans le Tableau 2, ainsi que ceux de la présente étude.

* Perspectives

Quelques voies d'amélioration des méthodes de caractérisation des microstructures de trempe dans les alliages de zirconium sont proposées ci-dessous :

Caractérisation morphologique : une méthodologie de détection des joints entre colonies de lamelles α a été présentée ainsi que l'indice de quantification des caractères vannerie/platelets parallèles. Une deuxième phase consisterait à définir des paramètres pertinents afin de classer les microstructures de trempe. À partir de la cartographie des joints de colonies de lamelles, il est possible de définir les facteurs de forme des colonies α , la distribution des tailles de ces colonies, leur orientation etc. Après l'identification des paramètres adaptés pour qualifier les divers types de microstructures, il faudrait enfin définir une classification des microstructures qui permettrait d'ajuster les procédés de fabrication en conséquence.

Quantification des variants à partir des analyses EBSD : dans cette thèse, les fractions des variants α ont été déterminées manuellement avec les outils du logiciel HKL. À partir des données des analyses EBSD, il est certainement possible de programmer un code pouvant quantifier les fractions des variants α dans une zone déterminée. Cette quantification automatique pourrait accélérer considérablement ces types de caractérisation. Il faut noter que le matériau étudié était en totalité en phase α mais que les ex-joints de grains β sont visibles. Les lamelles sont arrangées à l'intérieur des ex-grains β . La surface moyenne des ex-grains β est de l'ordre de 5 mm² alors que les lamelles ont une épaisseur de quelques micromètres. L'étude de la texture n'a pas de sens dans ce genre de microstructure, étant donné qu'un grain β ne peut engendrer que 12 orientations spécifiques de grains α (relation de Burgers) et que la taille des ex-grains β est telle qu'il y aura assurément, à l'échelle d'une éprouvette de l'ordre du centimètre, une « texture ». Ce ne serait pas forcément le cas dans la billette toute entière.

Sélection des variants : l'effet de l'orientation des grains β n'a pas été approfondi dans l'étude de la sélection des variants traitée dans cette thèse. Mais nous remarquons, à travers les résultats

expérimentaux (notamment dans les tableaux 9-12 du chapitre IV) que certaines orientations sont récurrentes ou proches les unes des autres. L'étude de la sélection des variants β pourrait venir compléter la présente étude. Il serait intéressant de suivre via une analyse EBSD, un même ex-grain β pendant un cycle $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$. De cette manière, nous pourrions déterminer l'influence de l'orientation du grain β parent sur la sélection des variants α au refroidissement.

Modèle de sélection des variants : d'une part, comme précédemment mentionné, il serait plus pertinent d'imposer une loi de probabilité pour le tirage des variants en fonction de leur impact sur la minimisation de l'énergie du système. D'autre part, dans le souci de mieux approcher la réalité, une loi de germination devrait être intégrée dans le modèle afin de générer les structures vannerie et platelets parallèles et d'observer leur influence sur la sélection des variants.

L'approche par champs de phases de [6] et [7] pourrait aussi être source d'inspiration pour le développement de modèles raffinés assurant le couplage entre transformation de phase et thermomécanique à l'échelle macroscopique pour l'évaluation des contraintes de trempe et à l'échelle microscopique pour la précision de la sélection de variants et de la morphologie des lamelles α .

Naturellement, ces modèles qui seraient conçus pour le Zircaloy-4, pourraient s'appliquer aussi aux autres alliages de zirconium. Leur extension aux alliages de titane, avec leur incidence sur les industries aéronautique et biomédicale, serait aisément envisageable sous réserve d'intégrer soigneusement la diffusion et la répartition des éléments d'alliage, en général plus nombreux et en plus grande proportion dans ces alliages comparés à ceux de zirconium. Ils pourraient aussi constituer un outil utile pour la compréhension des transformations de phases de Widmanstätten qui se produisent dynamiquement pendant la déformation plastique (ferrite au-dessus de A_{e3} dans l'austénite [8], précipitation dynamique de titane α dans le Ti 5553 [9]). Le caractère générique de ces modèles pourrait être mis à profit pour étudier plus largement les transformations martensitiques dans les aciers ou les alliages à mémoire de forme.

Tableau 1 : Synthèse des résultats expérimentaux sur la caractérisation des microstructures de trempe dans l'alliage Zircaloy-4

	État initial trempé	État initial brut	Effet de la double trempe	Vitesse de trempe (micrographies prises à Uginé)	Effet de trempe en surface	Effet de trempe au cœur de l'éprouvette	Essai en traction	Essai en compression
Morphologie α	lamellaire	équiaxes	lamellaire					
Texture générale	pas de texture	texturé dans la direction z	Pas étudiée					
Taille de β (surface ou diamètre pondéré)	0,4-4 mm ²	pas visible	Après une trempe : 600 μm ; Après une trempe lente puis une 2ème trempe : 1500 μm ; Après une trempe rapide + une 2ème trempe 800 μm	dépend des échantillons étudiés	0,2 à 5,8 mm ²	0,2-4 mm ²	0,2-5 mm ²	0,1-4 mm ²
Épaisseur des lamelles α	4-15-17 μm du bord au centre	37 μm de diamètre	Trempe rapide : 1 μm et Trempe lente : 4,5 μm	dépend des échantillons étudiés	8-10 μm après trempe	7 μm		
χ	0,72 - mi-épaisseur et au centre		Trempe rapide : 0,2 et trempe lente : 0,5	$\chi = 0,25$ à 0,14 en augmentant la vitesse	Vannerie mais diminution avec la trempe	0,92 à 2 mm de la surface	0,98	0,97
	0,62 - au bord					0,81 à mi-épaisseur		
K_n	K_r et $K_\theta = 0,2$ à 0,53		1/3 pr les 2 types de trempes	Pas étudié	K_n a augmenté	0,41 à 2mm de la surface	1/3 (isotrope)	légèrement inférieur pour K_z
	$K_z = 0,1-0,44$					0,28 à mi-épaisseur		
Q	0,25		Q est légèrement plus élevé quand la dernière trempe est lente	Pas étudié	Q a augmenté	0,27 à 2 mm de la surface	0,14	0,14
						0,20 à mi-épaisseur		
Q_{tv}	0,26		Même remarque que précédemment	Pas étudié	Q_{tv} a augmenté	0,24 à 2 mm de la surface	0,14	0,15
						0,18 à mi-épaisseur		

Tableau 2 : Synthèse des résultats sur l'étude de la sélection de variants

Auteur	Type d'alliage	Contrainte appliquée σ (MPa)	Cycles thermiques	Morphologie des grains α	Taille des grains α	Taille des grains β	Vitesse de chauffage	Vitesse de refroidissement	Historique thermomécanique	Observations
Gey <i>et al.</i>	Zircaloy-4	1,2 à 8,2 appliquée au chauffage	cycle α - β - α	équiaxe à l'EI ; lamellaire à l'EF	distribution hétérogène mais $< 25 \mu\text{m}$	non visible à l'EI ; 100-300 μm de diamètre	10 °C/s	10 °C/s	extrudé à chaud puis dans le haut domaine α	Sans contrainte la texture est intensifiée et à l'inverse, en présence de la contrainte au chauffage, le texture est relaxée
Wenk <i>et al.</i>	Zircaloy-4	absence	2 cycles α - β - α	lamellaire	$e = 10 \mu\text{m}$ $l = 50 \mu\text{m}$	non renseigné	20 °C/min	plus lent que la vitesse de chauffage	extrudé à chaud	les cycles thermiques n'influent pas sur la texture issue de la précédente déformation
Romero <i>et al.</i>	Zircaloy-2	absence	cycle α - β - α	lamellaire après le cycle	env 10 μm d'épaisseur	après le cycle, 100-200 μm de diamètre	10 °C/s	50 °C/s	laminé à chaud puis β -trempé	Sans contrainte la texture est relaxée
Daymond <i>et al.</i>	Zr-2,5%Nb	absence	3 cycles α - β - α	lamellaire	0,35 à 0,45 μm d'épaisseur	non renseigné	20 °C/min	20 °C/min	extrudé à chaud	après le 1re cycle, la texture α change drastiquement ; la phase β prend une texture cubique
Mosbrucker <i>et al.</i>	Zr-2,5%Nb	1,8 au chauffage	1 à 3 cycles α - β - α	non renseigné	non renseigné	non renseigné	100 °C/min	non renseigné	extrudé dans le domaine biphasé	en traction et en compression, la texture de la phase α a complètement changée ; en compression, la phase β prendre une texture cubique
		1,8 au refroidissement								en traction et en compression, la texture de la phase α a complètement changée et légèrement différente précédemment ; en compression, la phase β prendre une texture cubique et en traction, c'est la même texture que la phase α
		1,8 pendant tout le cycle								Phase α : texture totalement modifiée ; Phase β : texture cubique finale
Présente thèse	Zircaloy-4	absence	cycle α - β - α	lamellaire	$e=10 \mu\text{m}$	1 - 5 mm ² de diamètre	2 °C/s	27 °C/s	forgé puis β -trempé	en surface : forte sélection des variants, elle s'estompe au fur à mesure que l'on s'approche du cœur de l'éprouvette
		2,5 en compression et 4 en traction lors du refroidissement					12 °C/s	moins élevée que précédemment	forgé puis β -trempé	les facteurs de sélection sont abaissés, approche d'un état isotrope

- [1] N. Gey, E. Gautier, M. Humbert, A. Cerqueira, J. L. Bechade, and P. Archambault, “Study of the α/β phase transformation of Zy-4 in presence of applied stresses at heating: analysis of the inherited microstructures and textures,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 302, no. 2–3, pp. 175–184, Apr. 2002.
- [2] J. Romero, M. Preuss, and J. Quinta da Fonseca, “Capturing the texture changes in a zirconium alloy during the allotropic phase transformation,” *Scr. Mater.*, vol. 61, no. 4, pp. 399–402, Aug. 2009.
- [3] H.-R. Wenk, I. Lonardelli, and D. Williams, “Texture changes in the hcp \rightarrow bcc \rightarrow hcp transformation of zirconium studied in situ by neutron diffraction,” *Acta Mater.*, vol. 52, no. 7, pp. 1899–1907, Apr. 2004.
- [4] M. R. Daymond, R. A. Holt, S. Cai, P. Mosbrucker, and S. C. Vogel, “Texture inheritance and variant selection through an hcp–bcc–hcp phase transformation,” *Acta Mater.*, vol. 58, no. 11, pp. 4053–4066, Jun. 2010.
- [5] P. L. Mosbrucker, “Texture Evolution and Variant Selection in Zr-2.5Nb During the α - β Phase Transformation,” Queen’s University, 2010.
- [6] R. Shi and Y. Wang, “Variant selection during α precipitation in Ti–6Al–4V under the influence of local stress – A simulation study,” *Acta Mater.*, vol. 61, no. 16, pp. 6006–6024, Sep. 2013.
- [7] K. Ammar, “Modelling and Simulation of Phase Transformation - Mechanics Coupling Using the Phase Field Method,” Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2010.
- [8] J. J. Jonas, C. Ghosh, “Role of mechanical activation in the dynamic transformation of austenite,” *Acta Mater.*, vol. 61, no. 16, pp. 6125–6131, 2013.
- [9] S. Andrieu, A. M. Fall, D. Piot, F. Montheillet, “Occurrence of dynamic alpha phase nucleation in Ti-5553 during hot deformation,” *Adv. Mater. Res.*, vol. 922, pp. 149–154, 2014.

ANNEXES

Annexe 1 : Méthode détaillée des calculs présentés dans la sous-section II.2.3

Dans la sous-section II.2.3, sont abordées des questions particulières qui relèvent du cadre général du modèle de sélection de pseudo-variants par minimisation de l'énergie élastique présenté dans la section II.2.1, à savoir les cas (i) d'une éprouvette, constituée d'un seul ex-grain β , où la contrainte externe est imposée nulle – déformation libre – ou bien où la contrainte externe est uniforme, plane et isotrope, et (ii) d'un ex-grain β d'une éprouvette polycristalline isotrope, après transformation totale en α , dans le cadre de l'accommodation d'Eshelby.

À ce stade la méthode peut-être décrite génériquement ; en effet, il suffit d'annuler la contrainte imposée pour obtenir le cas où la déformation est libre, et il suffit de considérer soit les 6 déformations de Bain des pseudo-variants de (II.5), soit les 6 déformations correspondantes après la relaxation d'Eshelby de (II.14) et les deux hypothèses sont regroupées indifféremment pour l'instant sous la notation générique $\boldsymbol{\epsilon}^k$. La procédure de sélection de pseudo-variants ne fait intervenir que la partie déviatorique de la déformation moyenne,

$$\boldsymbol{\epsilon} = \boldsymbol{\epsilon}_\beta^{\text{ext}} + \sum_{k=1}^6 f_k \boldsymbol{\epsilon}^k, \quad (\text{B.1})$$

où $\boldsymbol{\epsilon}_\beta^{\text{ext}}$ est la partie déviatorique du tenseur des déformations, exprimé dans le repère de l'ex-grain β , lié par la loi de Hooke à l'état imposé de contrainte externe.

Il s'agit maintenant de minimiser $\|\boldsymbol{\epsilon}\|$ sous la contrainte $\sum_{k=1}^6 f_k = 1$.

$$\begin{aligned} \|\boldsymbol{\epsilon}\|^2 &= f_1^2 \|\boldsymbol{\epsilon}^1\|^2 + L + f_6^2 \|\boldsymbol{\epsilon}^6\|^2 + 2f_1 f_2 \boldsymbol{\epsilon}^1 : \boldsymbol{\epsilon}^2 + L + 2f_5 f_6 \boldsymbol{\epsilon}^5 : \boldsymbol{\epsilon}^6 + \\ &\quad \|\boldsymbol{\epsilon}_\beta^{\text{ext}}\|^2 + 2\boldsymbol{\epsilon}_\beta^{\text{ext}} : (f_1 \boldsymbol{\epsilon}^1 + L + f_6 \boldsymbol{\epsilon}^6). \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Cette minimisation est équivalente, grâce à l'introduction d'un multiplicateur de Lagrange λ , à celle de S , en supposant indépendantes les 6 fractions f_k ,

$$S = \|\boldsymbol{\epsilon}\|^2 - \lambda (f_1 + L + f_6 - 1). \quad (\text{B.3})$$

En raison des symétries cristallines, il y a correspondance biunivoque entre les produits $\boldsymbol{\epsilon}^i : \boldsymbol{\epsilon}^j$ et la désorientation minimale entre les pseudo-variants i et j considérés. Celle-ci peut être nulle quand $i = j$ et sinon peut prendre les valeurs de 90° et de 60° . Par la suite, la notation est allégée en utilisant,

$$\begin{aligned}
E_0 &= \|\boldsymbol{\varepsilon}^1\|^2 = L = \|\boldsymbol{\varepsilon}^6\|^2 \\
E_1 &= \boldsymbol{\varepsilon}^1 : \boldsymbol{\varepsilon}^2 = \boldsymbol{\varepsilon}^3 : \boldsymbol{\varepsilon}^4 = \boldsymbol{\varepsilon}^5 : \boldsymbol{\varepsilon}^6 \\
E_2 &= \boldsymbol{\varepsilon}^1 : \boldsymbol{\varepsilon}^3 = \boldsymbol{\varepsilon}^1 : \boldsymbol{\varepsilon}^4 = L
\end{aligned} \tag{B.4}$$

E_0 correspond ainsi à la désorientation 0° , E_1 à celle de 90° et E_2 à celle de 60° . Plus visuellement, la table des produits est dressée dans le tableau B.1. Cette symétrie est mise à profit pour regrouper la notation de toutes les configurations cristallographiquement équivalentes. Comme, parmi n pseudo-variants présents, il y a $p = n(n-1)/2$ paires, la classe des configurations équivalentes peut se noter $[60^i, 90^j]$ avec $i+j=p$, ce qui signifie que parmi les p paires présentes, la désorientation minimale de 60° apparaît i fois et celle de 90° , j fois.

TABLEAU B.1 – Table des produits doublement contractés

	$\boldsymbol{\varepsilon}^1$	$\boldsymbol{\varepsilon}^2$	$\boldsymbol{\varepsilon}^3$	$\boldsymbol{\varepsilon}^4$	$\boldsymbol{\varepsilon}^5$	$\boldsymbol{\varepsilon}^6$
$\boldsymbol{\varepsilon}^1$	E_0	E_1	E_2	E_2	E_2	E_2
$\boldsymbol{\varepsilon}^2$	E_1	E_0	E_2	E_2	E_2	E_2
$\boldsymbol{\varepsilon}^3$	E_2	E_2	E_0	E_1	E_2	E_2
$\boldsymbol{\varepsilon}^4$	E_2	E_2	E_1	E_0	E_2	E_2
$\boldsymbol{\varepsilon}^5$	E_2	E_2	E_2	E_2	E_0	E_1
$\boldsymbol{\varepsilon}^6$	E_2	E_2	E_2	E_2	E_1	E_0

Avec les dernières notations, S s'exprime plus simplement,

$$\begin{aligned}
S &= (f_1^2 + L + f_6^2)E_0 + 2(f_1f_2 + f_3f_4 + f_5f_6)E_1 + \\
&2(f_1f_3 + f_1f_4 + f_1f_5 + f_1f_6 + f_2f_3 + f_2f_4 + f_2f_5 + f_2f_6 + f_3f_5 + f_3f_6 + f_4f_5 + f_4f_6)E_2 + \\
&\|\boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}}\|^2 + 2\boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : (f_1\boldsymbol{\varepsilon}^1 + L + f_6\boldsymbol{\varepsilon}^6) - \lambda(f_1 + L + f_6 - 1).
\end{aligned} \tag{B.5}$$

$$\begin{cases} \frac{\partial S}{\partial f_1} = 2f_1E_0 + 2f_2E_1 + 2(f_3 + f_4 + f_5 + f_6)E_2 + 2\boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : \boldsymbol{\varepsilon}^1 - \lambda = 0 & (a) \\ \frac{\partial S}{\partial f_2} = 2f_2E_0 + 2f_1E_1 + 2(f_3 + f_4 + f_5 + f_6)E_2 + 2\boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : \boldsymbol{\varepsilon}^2 - \lambda = 0 & (b) \end{cases} \tag{B.6}$$

Ce système est équivalent à $\begin{cases} ((a)+(b))/2 \\ ((a)-(b))/2 \end{cases}$, soit

$$\begin{cases} E_0(f_1 + f_2) + E_1(f_1 + f_2) + 2E_2(1 - f_1 - f_2) = \lambda - \boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : (\boldsymbol{\varepsilon}^1 + \boldsymbol{\varepsilon}^2) \\ E_0(f_1 - f_2) + E_1(f_2 - f_1) = \boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : (\boldsymbol{\varepsilon}^2 - \boldsymbol{\varepsilon}^1) \end{cases} \quad (\text{B.7})$$

ou encore,

$$\begin{cases} (E_0 + E_1 - 2E_2)(f_1 + f_2) = \lambda - \boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : (\boldsymbol{\varepsilon}^1 + \boldsymbol{\varepsilon}^2) - 2E_2 & (c) \\ (E_0 - E_1)(f_1 - f_2) = \boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : (\boldsymbol{\varepsilon}^2 - \boldsymbol{\varepsilon}^1) & (d) \end{cases} \quad (\text{B.8})$$

Des sous-systèmes, analogues *mutatis mutandis*, s'obtiennent aussi pour les autres couples (f_3, f_4) et (f_5, f_6) .

En sommant les 3 équations analogues à (c), il vient la condition nécessaire

$$E_0 + E_1 - 2E_2 = 3\lambda - \boldsymbol{\varepsilon}_\beta^{\text{ext}} : (\boldsymbol{\varepsilon}^1 + \dots + \boldsymbol{\varepsilon}^6) - 6E_2, \quad (\text{B.9})$$

or il est facile de constater que $\sum_{k=1}^6 \boldsymbol{\varepsilon}^k = \mathbf{0}$, et donc

$$\lambda = (E_0 + E_1 + 4E_2)/3. \quad (\text{B.10})$$

À ce stade, il est plus pertinent de différencier les cas d'un ex-grain β isolé ou entouré d'une matrice isotrope pour spécifier les valeurs de E_0 , E_1 et E_2 qui sont indiquées dans le tableau B.2.

TABLEAU B.2 – Valeurs des produits doublement contractés E_0 , E_1 et E_2 . A est défini dans (II.14), $A = 2S_{44} = (8 - 10\nu)/[15(1 - \nu)]$.

	ex-grain β isolé	entouré d'une matrice
E_0	$2\varepsilon^2$	$13A^2\varepsilon^2/8$
E_1	ε^2	$11A^2\varepsilon^2/8$
E_2	$-3\varepsilon^2/4$	$-3A^2\varepsilon^2/4$

Il en résulte que, dans les deux cas étudiés,

$$\lambda = 0. \quad (\text{B.11})$$

Revenons au système (B.8), et introduisons δ_1 , δ_2 et k comme

$$\begin{aligned}
\delta_1 &= E_0 + E_1 - 2E_2, \\
\delta_2 &= E_0 - E_1, \\
k &= \delta_2 / \delta_1.
\end{aligned}
\tag{B.12}$$

Les valeurs des facteurs δ_1 et δ_2 et du ratio k sont données dans le tableau B.3.

TABLEAU B.3 – Valeurs des facteurs δ_1 et δ_2 et du ratio k

	ex-grain β isolé	entouré d'une matrice
δ_1	$9\varepsilon^2/2$	$9A^2\varepsilon^2/2$
δ_2	ε^2	$A^2\varepsilon^2/4$
k	$2/9$	$1/18$

Le système (B.8) est ainsi équivalent à

$$\begin{cases}
\delta_1 (f_1 + f_2) = -\varepsilon_{\beta}^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) - 2E_2 & (e) \\
\delta_2 (f_1 - f_2) = \varepsilon_{\beta}^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1)
\end{cases}
\tag{B.13}$$

d'où la solution de (B.8) en multipliant (e) de (B.13) par k ,

$$\begin{cases}
2\delta_2 f_1 = -k\varepsilon_{\beta}^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) + \varepsilon_{\beta}^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1) - 2kE_2 \\
2\delta_2 f_2 = -k\varepsilon_{\beta}^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) - \varepsilon_{\beta}^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1) - 2kE_2
\end{cases}
\tag{B.14}$$

Les autres fractions s'obtiennent de même.

Reste à expliciter $\varepsilon_{\beta}^{\text{ext}}$, le déviateur des déformations qui correspondent à la contrainte externe imposée. Dans le cas traité §II.2.3.b, il s'agit d'une contrainte plane isotrope uniforme. *Nota*, dans le chapitre II, la notation se référait alors à ces mêmes déformations mais intégrait à la fois les parties sphérique et déviatorique. Dans le présent contexte, le déviateur des déformations induites par la contrainte imposée, ε^{ext} s'exprime, dans le repère de l'éprouvette défini sur la figure II-3,

$$\varepsilon^{\text{ext}} = \frac{\sigma_{//}}{6\mu} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -2 \end{pmatrix}.
\tag{B.15}$$

Dans le repère du grain β parent, avec le changement de bases de (II.8) et (II.9), il s'explicite

$$\mathbf{\varepsilon}_{\beta}^{\text{ext}} = \frac{\sigma_{//}}{6\mu} \begin{pmatrix} \sin^2 \varphi + (\cos^2 \theta - 2 \sin^2 \theta) \cos^2 \varphi & -3 \sin \varphi \cos \varphi \sin^2 \theta & -3 \cos \varphi \sin \theta \cos \theta \\ -3 \sin \varphi \cos \varphi \sin^2 \theta & \cos^2 \varphi + (\cos^2 \theta - 2 \sin^2 \theta) \sin^2 \varphi & -3 \sin \varphi \sin \theta \cos \theta \\ -3 \cos \varphi \sin \theta \cos \theta & -3 \sin \varphi \sin \theta \cos \theta & \sin^2 \theta - 2 \cos^2 \theta \end{pmatrix}. \quad (\text{B.16})$$

Cas de la contrainte imposée nulle

Lorsque les 6 *pseudo-variants* sont présents, il suffit d'annuler $\mathbf{\varepsilon}_{\beta}^{\text{ext}}$ dans (B.14). Il y a une seule solution, commune aux deux cas traités, qui est dans la classe $[60^{12}, 90^3]$ et est obtenue par l'équirépartition parmi les 6 pseudo-variants. Le minimum absolu 0 de $\|\mathbf{\varepsilon}\|^2$ est alors atteint.

Néanmoins, est-il encore possible d'auto-accommoder entièrement les déformations de Bain avec moins de pseudo-variants ? Sinon, comment $\|\mathbf{\varepsilon}\|^2$ croît-il lorsque le nombre de pseudo-variants présents diminue ? Quelles configurations de pseudo-variants sont-elles favorisées ou défavorisées dans les différents cas ? Étudions donc successivement les cas à 2 pseudo-variants, puis 3, 4 et 5 après le cas où tous les 6 pseudo-variants sont présents.

Il est aisé de constater que dans les deux cas de calculs, les trois valeurs de E_0, E_1 et E_2 se classent de la même manière entre elles et par rapport à 0. Ainsi, lorsque la contrainte externe est imposée nulle, les calculs et les conclusions sont strictement identiques dans leur expression en fonction de E_0, E_1 et E_2 . Seules les valeurs numériques des résultats dépendent des valeurs numériques de ces 3 dernières.

Dans les cas de 2 *pseudo-variants*, 15 appariements sont possibles. Il convient de remarquer qu'il suffit de distinguer deux classes : $[60]$ avec 12 occurrences et $[90]$ avec 3 occurrences. Un représentant de la classe $[60]$ est obtenu par exemple avec les pseudo-variants 1 et 3. La résolution consiste à minimiser

$$\|\mathbf{\varepsilon}\|^2 = (f_1^2 + f_3^2) E_0 + 2f_1 f_3 E_2 = E_0 - 2f_1 f_3 (E_0 - E_2) \quad (\text{B.17})$$

sous la condition $f_1 + f_3 = 1$. La solution triviale est l'équirépartition entre les deux pseudo-variants et

$$\min \|\mathbf{\varepsilon}\|^2 = \frac{E_0 + E_2}{2} = \begin{cases} \frac{5\varepsilon^2}{8}, & \text{grain isolé} \\ \frac{7A^2\varepsilon^2}{16}, & \text{grain entouré.} \end{cases} \quad (\text{B.18})$$

L'analyse est identique pour la classe [90] avec, par exemple, les pseudo-variants 1 et 2 et conduit aux même conclusions mais avec

$$\min \|\boldsymbol{\varepsilon}\|^2 = \frac{E_0 + E_1}{2} = \begin{cases} \frac{3\varepsilon^2}{2}, & \text{grain isolé} \\ \frac{3A^2\varepsilon^2}{2}, & \text{grain entouré.} \end{cases} \quad (\text{B.19})$$

La classe [60] est donc énergétiquement favorisée par rapport à la classe [90].

La méthode se généralise sans difficulté notoire si ce n'est la longueur des calculs systématiques dont nous ne donnons ici que les résultats essentiels sous forme synthétique dans les tableaux B.4 et B.5, pour les cas d'un ex-grain β respectivement isolé et entouré d'une matrice α isotrope. Comme $A \approx 0.48$, les énergies associées aux arrangements optimaux de pseudo-variants sont plus petites, de l'ordre du quart, dans le cas d'un ex-grain β entouré de matrice que dans celui d'un ex-grain β isolé à raison de la relaxation introduite par l'accommodation d'Eshelby.

TABLEAU B.4 – Synthèse pour un ex-grain β isolé sous une contrainte imposée nulle. Les lignes sur fond grisé correspondent au cas énergétiquement le plus favorable lorsque plusieurs sont possibles.

Nombre de pseudovariants	Classe	Multiplicité	Fractions optimales	$\min \ \varepsilon\ ^2 / \varepsilon^2$
1		6	1	2
2	[60]	12	1/2	5/8
	[90]	3	1/2	3/2
3	[60 ³]	8	1/3	1/6
	[60 ² , 90]	12	$f_{1,2} = 11/40$ $f_3 = 9/20$	39/80
4	[60 ⁵ , 90]	12	$f_{1,5} = 9/29$ $f_{3,4} = 11/58$	3/29
	[60 ⁴ , 90 ²]	3	1/4	3/8
5	[60 ⁸ , 90 ²]	6	$f_{1,2,3,4} = 11/62$ $f_5 = 9/31$	3/62
6	[60 ¹² , 90 ³]	1	1/6	0

TABLEAU B.5 – Synthèse pour un ex-grain β entouré sous une contrainte imposée nulle. Les lignes sur fond grisé correspondent au cas énergétiquement le plus favorable. Les cellules sur fond jaune indiquent les fractions optimales qui se départent de celles du tableau B.4.

Nombre de pseudo-variants	Classe	Multiplicité	Fractions optimales	$\min \ \varepsilon\ ^2 / (A\varepsilon)^2$
1		6	1	13/8
2	[60]	12	1/2	7/16
	[90]	3	1/2	3/2
3	[60 ³]	8	1/3	1/24
	[60 ² , 90]	12	$f_{1,2} = 19/74$ $f_3 = 36/74$	15/37
4	[60 ⁵ , 90]	12	$f_{1,5} = 18/55$ $f_{3,4} = 19/110$	3/110
	[60 ⁴ , 90 ²]	3	1/4	3/8
5	[60 ⁸ , 90 ²]	6	$f_{1,2,3,4} = 19/112$ $f_5 = 36/112$	3/224
6	[60 ¹² , 90 ³]	1	1/6	0

Cas d'un ex-grain β isolé avec une contrainte imposée

Il suffit de spécifier les valeurs dans (B.14) pour obtenir les fractions de pseudo-variants,

$$\begin{cases} f_1 = \frac{1}{6} - \frac{1}{9\varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) + \frac{1}{2\varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1) \\ f_2 = \frac{1}{6} - \frac{1}{9\varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) - \frac{1}{2\varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1) \end{cases} \quad (\text{B.20})$$

avec

$$\varepsilon^1 + \varepsilon^2 = \varepsilon \begin{pmatrix} -2 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \varepsilon^2 - \varepsilon^1 = \varepsilon \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \\ 0 & -1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.21})$$

Puis, (B.16) permet d'expliciter complètement les fractions dans l'hypothèse où les 6 pseudo-variants sont présents, cf. (II.10).

Les fonctions trigonométriques Y_k utilisées dans (II.10) sont définies comme suit :

$$\begin{aligned}
Y_1(\theta, \varphi) &= -12 \cos^2 \varphi \sin^2 \theta + 36 \sin \varphi \cos \varphi \sin \theta + 4 \\
Y_2(\theta, \varphi) &= -12 \cos^2 \varphi \sin^2 \theta - 36 \sin \varphi \cos \varphi \sin \theta + 4 \\
Y_3(\theta, \varphi) &= -12 \sin^2 \varphi \sin^2 \theta + 36 \cos \varphi \cos \theta \sin \theta + 4 \\
Y_4(\theta, \varphi) &= -12 \sin^2 \varphi \sin^2 \theta - 36 \cos \varphi \cos \theta \sin \theta + 4 \\
Y_5(\theta, \varphi) &= 12 \sin^2 \theta + 36 \sin \varphi \cos \varphi \sin^2 \theta - 8 \\
Y_6(\theta, \varphi) &= 12 \sin^2 \theta - 36 \sin \varphi \cos \varphi \sin^2 \theta - 8
\end{aligned} \tag{B.22}$$

À partir des fractions déterminées ci-dessus, le facteur de Kearns de l'arrangement des pseudo-variants est calculé comme indiqué dans §II.2.3.c. Le résultat est explicité dans (II.12), qui fait intervenir la fonction trigonométrique T ,

$$T(\theta, \varphi) = 96(\sin^4 \varphi + \cos^2 \varphi) \sin^4 \theta - 96 \sin^2 \theta + 8. \tag{B.23}$$

Cas d'un ex-grain β entouré d'une matrice isotrope

De même, il suffit de spécifier les valeurs de ce cas dans (B.14) pour obtenir les fractions de pseudo-variants,

$$\begin{cases} f_1 = \frac{1}{6} - \frac{1}{9A^2 \varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) + \frac{2}{A^2 \varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1) \\ f_2 = \frac{1}{6} - \frac{1}{9A^2 \varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^1 + \varepsilon^2) - \frac{2}{A^2 \varepsilon^2} \varepsilon_\beta^{\text{ext}} : (\varepsilon^2 - \varepsilon^1) \end{cases} \tag{B.24}$$

avec

$$\varepsilon^1 + \varepsilon^2 = A\varepsilon \begin{pmatrix} -2 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \varepsilon^2 - \varepsilon^1 = A\varepsilon \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1/2 \\ 0 & -1/2 & 0 \end{pmatrix}. \tag{B.25}$$

La suite des calculs est assez similaire à ceux du cas précédent et ne sont pas développés ici.

Annexe : Artéfact des analyses EBSD sur les structures hexagonales

La distribution des angles de désorientation (Misorientation Angle Distribution) montre bien les 5 angles de désorientation possibles entre lamelles. Cependant, il y a un fort pic à 30° qui est un artéfact dû à la pseudosymétrie hexagonale. Pour remédier à cela, il existe une fonction dans le logiciel HKL qui permet de corriger cet artéfact mais cela n'est pas suffisant, il en reste toujours. Pour être plus rigoureux il faut enlever manuellement ce pic à 30° de la MAD (voir figure 1). Un grand pic vers 5° est aussi observé, ces désorientations correspondent à des petites désorientations entre lamelles lors de leur croissance. Ce pic et la largeur des autres pics résultent des accommodations plastiques. Elles ne sont pas pertinentes dans l'étude de la sélection des variants, ce pic sera aussi enlevé de la MAD. Enfin, il y a un léger pic à 20° qui n'est cependant pas négligeable, cette désorientation est une conséquence du pic à 30° . Sur la figure 3 seuls les variants ayant un même axe c sont en couleur. On remarque que la lamelle en verte claire et la lamelle en violet sont désorientées de 30° autour de l'axe $[0001]$, il s'agit bien de l'artéfact, ces deux lamelles ont la même orientation. Les lamelles en vert clair et vert foncé sont désorientées de 10° , ce sont donc les variants jumeaux. La lamelle violette est désorientée de 20° avec la lamelle verte foncée, ce qui montre bien que le pic à 20° correspond au pic de 10° . Le graphe de la figure 2 montre la distribution des angles de désorientation une fois que les corrections citées auparavant sont faites.

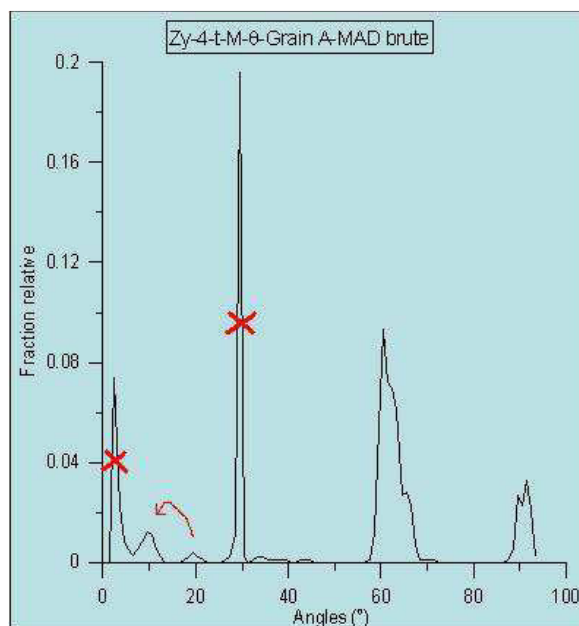


Figure 1 : Correction de la distribution des angles de désorientation

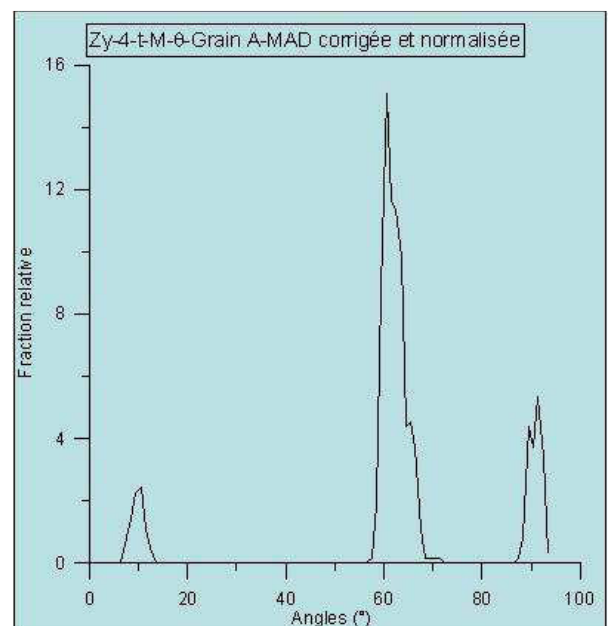


Figure 2 : Distribution des angles de désorientation corrigée

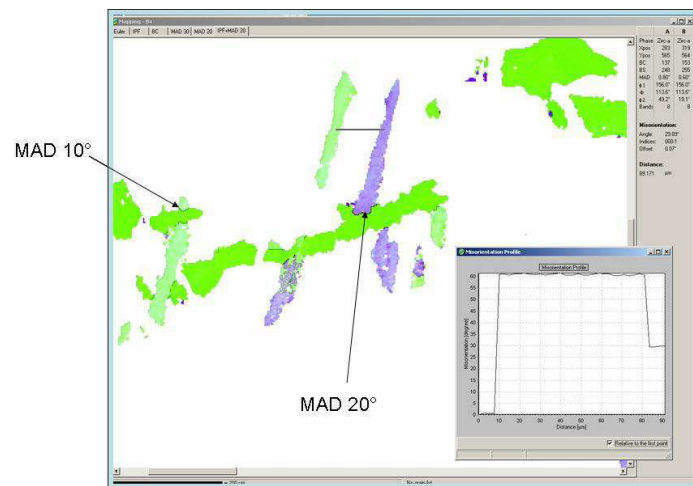


Figure 3 : Etude du pic de 20°

NNT : 2015 EMSE 0775

My Thu TRAN

CHARACTERIZATION OF QUENCHED MICROSTRUCTURE AND VARIANT SELECTION IN ZIRCALOY-4

Speciality: Materials Science and Engineering

Keywords: Zircaloy-4, variant selection, EBSD, microstructure, quench, elastic energy

Abstract :

Zirconium alloys are frequently used in nuclear fuel assemblies. They are chosen for their low neutron absorption, their mechanical properties and their corrosion resistance. A better understanding of the microstructure evolution of these alloys should allow a better control of their process of fabrication. During processing, several quenches, from the beta to the alpha domain take place. The resulting microstructures are lamellar and are called Widmanstätten microstructures. These lamellae are either disposed in parallel or in crisscross and are named, “parallel platelets” and “basketweave”, respectively. These various morphologies have a significant impact on the extrusion; basketweaves facilitate grain fragmentation unlike parallel platelets. In this thesis project, a methodology was developed in order to quantify these morphologies.

During the phase transformation, one beta grain can generate 12 different orientations of new alpha grains. The parameters which can influence variants selection are not yet well-known. The model proposed in the present study is based on the minimization of the mean elastic energy of the system during the phase transformation. First results were obtained analytically. Then, additional effects such as the Eshelby relaxation, the elastic anisotropy and the external strain were implemented numerically. In parallel, each alpha variant was quantified within a former beta grain by EBSD analysis. The comparison between the model and the experiments helped to partially validate the model as well as determine the quench strain on the surface of the sample. It was then possible to study the effect of quench strain on the variant selection.

NNT : 2015 EMSE 0775

My Thu TRAN

CARACTÉRISATION DES MICROSTRUCTURES TREMPÉES ET SÉLECTION DES VARIANTS DANS LE ZIRCALOY-4

Spécialité: Sciences et Génie des matériaux

Mots clefs : Zircaloy-4, sélection des variants, EBSD, microstructure, trempe, énergie élastique

Résumé :

Les alliages de zirconium sont utilisés notamment dans les assemblages de combustible nucléaire pour leur transparence aux neutrons ainsi que pour leur tenue mécanique et leur résistance à la corrosion. La connaissance de leur microstructure et de son évolution est nécessaire pour maîtriser les différents traitements thermomécaniques de la gamme de transformation qui comporte plusieurs trempes depuis le domaine bêta. Cette microstructure présente, à l'issue d'une trempe, des lamelles dites de Widmanstätten. Ces dernières soit se disposent parallèlement entre elles (platelets parallèles), soit se croisent en vannerie. Ces morphologies jouent sur l'étape suivante de filage ; en effet, les platelets parallèles défavorisent la fragmentation des lamelles. Une méthode a été mise en place pour quantifier ces morphologies.

Lors de la transformation bêta vers alpha, un grain peut générer 12 orientations alpha (variants). Les paramètres qui influencent leur sélection sont encore peu connus. Le modèle proposé minimise la déformation moyenne lors de la transformation. D'abord analytique, il a été ensuite implémenté numériquement afin d'aborder des effets tels que la relaxation d'Eshelby, l'anisotropie élastique, une contrainte extérieure ou le voisinage. En parallèle, la sélection expérimentale a été quantifiée au moyen original de l'EBSD et des fractions des variants locales dans un ex-grain bêta. La confrontation des résultats expérimentaux avec le modèle a permis de le valider en partie et de déterminer la contrainte de trempe à la surface des éprouvettes ainsi que son effet sur la sélection de variants.